

Paris 1971

ORSAY
Série A
N° d'ordre
776

T H E S E

PRESENTEE

A LA FACULTE DES SCIENCES D'ORSAY

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES APPLIQUEES

par

Alain BRENAC

ETUDE PAR MICROSCOPIE ELECTRONIQUE DES DEFAUTS PONCTUELS
INTRODUITS PAR TREMPERIE ET IRRADIATION, DANS LE TUNGSTENE

Soutenue le 10 Mai 1971, devant la Commission d'Examen

M. J. FRIEDEL Président

Mme M. LAMBERT

MM. J. GRILHE
J. LETEURTRE Examineurs
Y. QUERE

T H E S E

PRESENTEE

A LA FACULTE DES SCIENCES D'ORSAY

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES APPLIQUEES

par

Alain BRENAC

**ETUDE PAR MICROSCOPIE ELECTRONIQUE DES DEFAUTS PONCTUELS
INTRODUITS PAR TREMPÉ ET IRRADIATION, DANS LE TUNGSTENE**

Soutenue le 10 Mai 1971, devant la Commission d'Examen

M. J. FRIEDEL Président

Mme M. LAMBERT

**MM. J. GRILHE
J. LETEURTRE Examineurs
Y. QUERE**

*En hommage à la mémoire
de mon camarade J. PONSOT*



A mes parents,

A ma femme.

En hommage à la mémoire
de mon camarade J. PONSOYE

REMERCIEMENTS

Je dois à Monsieur MUSTELIER, Chef du Service du Plutonium, d'avoir pu effectuer ce travail dont il est l'initiateur, dans des conditions parfaites tant sur le plan de la direction scientifique que des conditions matérielles de manipulations. Qu'il en soit ici vivement remercié.

J'exprime ma vive reconnaissance à Monsieur le Professeur FRIEDEL qui a suivi le déroulement de cette recherche tout au long de ces années souvent difficiles, et qui m'a fait l'honneur de bien vouloir assurer la présidence de mon jury. Je veux associer aussi dans un même remerciement Monsieur Y. QUERE, Chef de la Section de Métallurgie du Plutonium et des Actinides et Monsieur J. LETEURTRE pour les conseils, les idées ou les critiques toujours constructives qu'ils n'ont cessé de me prodiguer et pour l'amitié qu'ils m'ont toujours témoignée.

Je tiens à remercier Madame M. LAMBERT et Monsieur J. GRILHE d'avoir accepté de figurer comme examinateurs dans mon jury. Je dois à J. GRILHE de fructueuses discussions sur de nombreux sujets.

Je ne saurais enfin oublier de citer l'ensemble de mes amis du Groupe d'Effets des Radiations qui ont tous plus ou moins contribué à l'avancement de mes travaux, ne fût-ce que par leur constante gentillesse à mon égard.

Je dois une mention particulière à mes collègues du laboratoire de Microscopie au premier rang desquels je dois citer Madame N. HOUSSEAU, Messieurs J. ARDONCEAU, A. FRANCOIS, A. HUE, J. MASOUNAVE, J.L. POUCHOU et L. ZUPPIROLI.

Mes remerciements vont enfin à Madame PINGOUROUX et Monsieur SALMON pour la réalisation pratique de cet ouvrage.

P L A N

- INTRODUCTION.
- CHAPITRE I - Généralités sur les défauts cristallins dans les métaux cubiques centrés.
 - I. 1 - Défauts ponctuels.
 - I. 1. 1 - Configurations de l'interstitiel.
 - I. 1. 2 - Migration des impuretés.
 - I. 1. 3 - Défauts intrinsèques.
 - I. 1. 3. 1 - La lacune.
 - I. 1. 3. 2 - Les autres défauts. Interprétation des stades de recuit.
 - I. 1. 3. 3 - Propriétés de diffusion. Volumes de formation.
 - I. 1. 4 - Propriétés des défauts ponctuels.
 - I. 2 - Les dislocations dans la structure cubique centrée.
 - I. 2. 1 - Dislocations parfaites.
 - I. 2. 2 - Dissociations possibles - Plans de glissement.
 - I. 2. 3 - Maclage.
 - I. 3 - Propriétés caractéristiques des métaux cubiques centrés.
 - I. 3. 1 - Point de transition ductile-fragile.
 - I. 3. 2 - Loi de Petch.
 - I. 3. 3 - Propriétés physiques du tungstène.
- CHAPITRE II - Le tungstène en microscopie électronique.
 - II. 1 - Fabrication de lames minces de tungstène.
 - II. 1. 1 - Matériaux utilisés.
 - II. 1. 2 - Obtention des lames.
 - II. 2 - Les observations au microscope.
 - II. 2. 1 - Le microscope - Ses performances.
 - II. 2. 2 - Caractéristiques du tungstène en micro-diffraction.
 - II. 3 - Illustrations de la sous-structure.
 - II. 3. 1 - Observations en microscopie optique.
 - II. 3. 2 - Microstructure.
 - II. 3. 2. 1 - Aspects caractéristiques.
 - II. 3. 2. 2 - Dislocations et autres défauts du réseau.
- CHAPITRE III - Trempe de défauts ponctuels dans le tungstène.
 - III. 1 - Difficultés du problème.
 - III. 2 - Bains de trempe utilisés.
 - III. 2. 1 - Gaz liquéfiés.
 - III. 2. 2 - Bains métalliques.

- III.2.2.1 - Trempe dans l'alliage de Wood et dans le mercure.
 - III.3 - Description de l'appareillage de trempe.
 - III.4 - Trempe de lacunes dans le gallium.
 - III.4.1 - La trempe.
 - III.4.2 - Les recuits après trempe.
 - III.4.3 - Résultats.
 - III.4.3.1 - Aspect au microscope du tungstène trempé.
 - III.4.3.2 - Détermination du vecteur de Burgers et du plan de la boucle.
 - III.5 - Discussion des résultats.
 - III.5.1 - Géométrie des boucles.
 - III.5.2 - Energies de migration et de formation de la monolacune.
 - CHAPITRE IV - Irradiations de tungstène.
 - IV.1 - Rappels théoriques.
 - IV.1.1 - Modes de dissipation de l'énergie d'une particule.
 - IV.1.2 - Cascade de déplacements.
 - IV.2 - Particules d'irradiation et dispositifs expérimentaux.
 - IV.2.1 - Particules.
 - IV.2.1.1 - Neutrons.
 - IV.2.1.2 - Particules de fission.
 - IV.2.1.2.1 - Rendement en particules de fission.
 - IV.2.1.2.2 - Sources.
 - IV.2.1.2.3 - Contrôle du flux thermique.
 - IV.2.1.3 - Ions accélérés.
 - IV.2.2 - Dispositifs d'irradiations.
 - IV.2.2.1 - Irradiation aux neutrons.
 - IV.2.2.2 - Irradiation aux particules de fission.
 - IV.3 - Techniques d'observation.
 - IV.3.1 - Comptage des boucles.
 - IV.3.1.1 - Numération des amas.
 - IV.3.1.1.1 - Erreur statistique.
 - IV.3.1.1.2 - Corrections nécessitées par le comptage.
 - IV.3.1.2 - Epaisseur des lames.
 - IV.3.1.3 - Erreur relative sur les densités de boucles.
 - IV.3.2 - Vecteur de Burgers et nature des boucles.
 - IV.3.2.1 - "Dots".
 - IV.3.2.2 - Grosses boucles.
 - IV.4 - Résultats.
 - IV.4.1 - Irradiations de tungstène massif.
 - IV.4.1.1 - Effet des neutrons rapides.

- IV.4.1.1.1 - Fluence-seuil d'apparition des défauts.
- IV.4.1.1.2 - Recuits post-irradiation.
- IV.4.1.2 - Effet des particules de fission.
- IV.4.1.2.1 - Aspect micrographique.
- IV.4.1.2.2 - Variation de N avec la fluence.
- IV.4.2 - Echantillons minces.
- IV.4.2.1 - Courbe $N(\Phi)$.
- IV.4.2.2 - Analyse du contraste des amas.
- IV.4.3 - Autre irradiation .
- IV.5 - Discussion des résultats.
- IV.5.1 - Travaux existants sur le tungstène et le molybdène irradiés.
- IV.5.2 - Discussion.
- IV.5.2.1 - Difficultés de germination d'un amas d'irradiation.
- IV.5.2.2. - Différences de comportement entre échantillons massifs et minces.
- IV.5.2.2.1 - Modèle d'interprétation.
- IV.5.2.2.2 - Justification du modèle.
- CHAPITRE V -Germination sous contrainte de boucles d'irradiation.
- V.1 - Résultats expérimentaux connus.
- V.1.1 - Boucles anormales.
- V.1.2 - Fluage sous irradiation à basse température.
- V.2 - Prévisions théoriques sur la germination de boucles sous contrainte uniaxiale.
- V.2.1 - Effet d'une contrainte sur l'énergie élastique d'une boucle.
- V.2.2 - Germination de boucles anormales.
- V.2.2.1 - Conditions de germination - Contrainte critique.
- V.2.2.2 - Calcul de la contrainte critique.
- V.2.2.3 - Influence de la dissipation d'énergie au sein de la cascade sur σ_{cr} .
- V.2.2.4 - Applications de σ_{cr} à la taille critique de germination ; suggestion d'une expérience.
- V.2.3 - Anisotropie des populations de boucles induite par une contrainte uniaxiale.
- V.2.4 - Croissance naturelle et croissance artificielle.
- V.2.5 - Conclusion.
- V.3 - Dispositif expérimental d'irradiation sous contrainte.
- CONCLUSION.

INTRODUCTION

L'étude des défauts cristallins dans les métaux en général est arrivée à un point de développement tel que l'on peut prétendre, à juste titre, expliquer pour le moins qualitativement nombre de propriétés physique dont ces défauts sont responsables.

Il subsiste néanmoins un décalage notable entre la connaissance actuelle des métaux à structure cubique à face centrée (c.f.c.) et celle des métaux à maille cubique centre (c.c.) des colonnes V et VI qui nous intéresseront ici. Il existe à cela plusieurs raisons :

- 1 - sur le plan de la connaissance théorique, la structure électronique de nombreux métaux cubiques à faces centrées a été assez bien étudiée, et se trouve être mieux connue que celle, beaucoup plus complexe des métaux de transition comme W, Mo, Nb et Ta.
- 2 - il est naturel que l'intérêt se soit d'abord porté sur les matériaux d'usage plus courant souvent c.f.c. le fer mis à part (aluminium, cuivre, nickel etc...) pour lesquels on pouvait espérer des applications pratiques plus immédiates.
- 3 - enfin, une raison d'ordre pratique a pu orienter le chercheur : la grande sensibilité des métaux cubiques centrés aux impuretés (le carbone en particulier) qui impose un approvisionnement en matériaux de haute pureté, si on désire étudier des phénomènes "propres".

Malgré ces difficultés, on a assisté depuis quelques années à un effort généralisé pour une meilleure compréhension du rôle des défauts cristallins dans ces métaux. Ceci s'explique par l'intérêt technologique croissant que prennent ces matériaux réfractaires, spécialement dans les domaines aéronautique et spatial.

Les études fondamentales entreprises ont d'ailleurs été calquées pour la plupart sur les travaux déjà réalisés sur les métaux cubiques à face centrée. De même, les interprétations des résultats sont souvent inspirées de ce qu'on a pu proposer pour ces derniers. Nous n'en donnerons pour preuve que les tentatives d'explication concernant le stade III de guérison de la résistivité due aux défauts introduits par trempe ou irradiation : dans les deux types de structure, les mêmes écoles s'affrontent pour attribuer ce stade, qui aux lacunes, qui aux interstitiels, ou encore à des entités plus compliquées polydéfauts, interstitiel métastable etc...

BUT DE CETTE ETUDE.

Le présent travail a été entrepris dans le but de mieux connaître le comportement des défauts ponctuels introduits dans un métal cubique centré réfractaire par microscopie électronique.

On sait que les défauts peuvent être introduits artificiellement dans le réseau par trempe depuis le point de fusion, ce qui a pour effet de "geler" les lacunes hors de leur état d'équilibre, par irradiation avec des particules de toute sorte, ou par écrouissage.

Nous avons choisi les deux premières méthodes. En effet, la trempe de lacunes a été très peu étudiée et rarement couronnée de succès par microscopie électronique, pour ce type de métaux. D'autre part, la proximité d'un réacteur nucléaire nous a facilité l'emploi de la deuxième technique.

Il faut noter que la microscopie électronique ne permet évidemment pas de tirer des conclusions directes sur les défauts ponctuels du réseau; c'est par l'intermédiaire des boucles de dislocations obtenues après migration et condensation des défauts individuels créés à l'origine que l'on peut remonter, dans certains cas, aux propriétés de ces défauts.

CHOIX DU TUNGSTENE.

Plutôt que d'éparpiller nos recherches sur plusieurs réfractaires de la famille des métaux à structure cubique centrée, il nous a paru plus judicieux de faire porter notre travail sur l'un d'entre eux convenablement

choisi. Le tungstène nous a semblé correspondre particulièrement bien aux critères qui nous importaient :

a) C'est un métal typiquement réfractaire ; c'est en effet, de tous les métaux, celui qui a le point de fusion le plus élevé ($\theta_f > 3\,300^\circ\text{C}$). Il présente, à ce titre, un intérêt technologique particulier. D'autre part, ceci décale fortement les températures des pics de migration des différents défauts qui nous intéressent. C'est ainsi que, contrairement à beaucoup de métaux usuels, les lacunes sont immobiles à la température ordinaire ce qui facilite beaucoup certaines expériences.

b) C'est le métal isotrope par excellence. Seul parmi tous les métaux, le tungstène possède un coefficient d'anisotropie élastique nul. Ceci simplifie beaucoup, nous le verrons au cours du chapitre V, les calculs d'énergie élastique emmagasinée dans une boucle de dislocation sous contrainte, qui servent de support théorique aux irradiations sous contrainte uniaxiale.

c) Bien que sensible aux impuretés (N, C, O etc...), le tungstène est beaucoup moins sujet à la contamination que le molybdène et surtout que le niobium ou le tantale. Par ailleurs l'approvisionnement en matériau très pur est relativement plus facile pour le tungstène que pour les autres métaux de la famille.

d) Le tungstène s'active peu sous irradiation par neutrons rapides, ce qui facilite les problèmes de manipulation d'échantillons irradiés. La décroissance de l'activité est, en outre, très rapide ; l'isotope ^{187}W qui a la plus forte section efficace aux neutrons a une période de 24 heures seulement.

e) Un dernier argument d'ordre pratique joue en faveur du tungstène, et ce n'est pas le moindre : il s'amincit bien par polissage électrolytique et permet d'obtenir rapidement des lames minces de bonne qualité pour la microscopie électronique.

PLAN DE L'ETUDE.

Après quelques rappels dans le chapitre I sur l'état actuel de nos connaissances sur les défauts ponctuels, linéaires ou plans, dans les métaux à structure cubique centrée, ainsi que sur quelques propriétés spécifiques

de ces matériaux, nous aborderons l'étude du tungstène vu sous l'angle particulier de l'observation au microscope électronique. Ceci fera l'objet du deuxième chapitre.

Puis nous en viendrons aux expériences qui ont été réalisées : le chapitre III rend compte des trempes de lacunes dans le tungstène ; le chapitre IV traite de l'examen d'échantillons irradiés par différentes particules.

Dans le chapitre V, nous examinons l'influence qu'aurait une contrainte appliquée par l'expérimentateur sur l'énergie des boucles de dislocation au moment de leur germination. Ces considérations nous amènent à proposer des expériences d'irradiation sous contrainte afin d'essayer de déterminer le nombre de défauts nécessaire à la condensation d'une boucle submicroscopique. Nous sommes conduits à proposer la germination de boucles "anormales" dans certaines conditions, c'est-à-dire à vecteur de Burgers de type $\langle 100 \rangle$ au lieu du vecteur habituel $\frac{1}{2} \langle 111 \rangle$.

Chapitre I

GENERALITES SUR LES DEFAUTS CRISTALLINS DANS LES METAUX CUBIQUES CENTRES

Nous rappellerons ici quelques propriétés fondamentales relatives d'une part aux défauts ponctuels et de l'autre, aux défauts responsables plus particulièrement des propriétés plastiques des métaux cubiques centrés : dislocations, macles, défauts d'empilement etc... Nous conclurons en passant en revue quelques propriétés caractéristiques de ces métaux, plus particulièrement dans le cas du tungstène.

I.1 - DEFAUTS PONCTUELS.

Précisons d'abord que seuls ici sont concernés les métaux cubiques centrés de la colonne V : vanadium, niobium et tantale, et VI : chrome, molybdène et tungstène, auxquels nous ajouterons le fer α .

On a coutume de distinguer, en matière de défauts ponctuels, entre défauts "intrinsèques" c'est-à-dire les lacunes ou les atomes de la matrice en position interstitielle, et défauts "extrinsèques" qui sont des atomes étrangers à la matrice, en substitution dans le réseau ou en interstitiels. Nous l'avons déjà mentionné, le problème des impuretés est crucial pour les métaux qui nous intéressent. L'oxygène, l'azote, le carbone atteignent couramment des concentrations de 1 à $100 \cdot 10^{-6}$.

Disons quelques mots, en premier lieu du comportement de ces défauts extrinsèques. Les méconnaître nous exposerait en effet à attribuer à tort certains résultats aux véritables défauts ponctuels de la matrice.

En premier lieu quelles positions ces atomes étrangers peuvent-ils occuper ?

I. 1.1 - Configurations de l'interstitiel.

Le réseau cubique centré offre deux types de sites possibles simples pour l'interstitiel non dissocié :

- les sites octaédriques au nombre de 3 par atome occupent les milieux des côtés et centres des faces du cube. Des calculs faits par JOHNSON prouvent que le carbone dans le fer α ou l'azote dans le vanadium occupent ces positions.

- les sites tétraédriques au nombre de 6 par atome. BESHES [1], grâce à des calculs de distorsion élastique autour de l'impureté, attribue un tel type de site à l'oxygène et à l'azote dans le niobium et le tantale.

Ces deux sites sont représentés sur la figure 1.

N.B. - D'autres configurations d'interstitiel dissocié seront étudiées plus loin.

I. 1.2 - Migration des impuretés.

L'impureté a toujours un site vacant à sa disposition et la présence de lacunes du réseau n'est donc pas nécessaire pour qu'elle migre. Le tableau qui suit emprunté à SCHULTZ [2], à qui l'on doit une revue très détaillée de ces problèmes, donne les enthalpies de migration des impuretés essentielles (en eV) déterminées pour la plupart par des mesures de frottement interne.

	H	O	N	C
Nb	0,18	1,18	1,51	1,43
Ta	0,12	1,11	1,64	1,67
Mo	0,4	1,10	1,24	1,26
W	-	-	-	1,75
Fe	0,13	1	0,76	0,80

On note le manque de données pour le tungstène lié au fait que la solubilité en impuretés est beaucoup plus faible dans ce métal.

Il faut signaler que l'on a mis en évidence les interactions entre défauts extrinsèques qui, à l'exception peut-être du cas de l'hydrogène, peuvent se traiter en termes élastiques. Les enthalpies de liaison sont de l'ordre de 0,1 eV. Ces interactions sont responsables d'agrégats de poly-

défauts qui sont à l'origine de la précipitation de nouvelles phases. C'est ainsi qu'on a pu étudier la précipitation du carbone dans le tungstène par résistivité.

Certaines de ces phases ont une structure ordonnée; les exemples en sont très nombreux. On a pu ainsi identifier des phases du type $Ta_{27}N$ [3] ou $Ta_{64}C$ [4].

Dans le cas des impuretés gazeuses ou même du carbone, souvent introduit dans le matériau par décomposition d'hydrocarbures résiduels, les phénomènes de surface tels que adsorption, formation de composés superficiels déterminent généralement les cinétiques de pénétration ou de dégazage.

I. 1. 3 - Défauts intrinsèques.

I. 1. 3. 1 - La lacune.

Une place particulière doit être réservée à la lacune, car ce défaut a le privilège de pouvoir être étudié seul grâce à des expériences spécifiques, à savoir :

1) la trempe du matériau depuis le point de fusion qui retient les lacunes à la concentration correspondant à la température de trempe. En faisant varier cette température on est à même d'atteindre l'enthalpie de formation, par exemple par des mesures de résistivité.

2) la mesure de la déviation de la chaleur spécifique au voisinage du point de fusion a été considérée un certain temps comme un moyen de remonter à l'entropie et l'enthalpie de formation de la lacune. En fait, cette méthode est entachée d'une grave erreur d'interprétation à la base et nous ne présenterons les "résultats" des expériences s'y rattachant qu'avec la plus grande prudence.

3) l'observation directe du défaut par microscopie par émission de champ, qui renseigne sur son énergie de migration.

En ce qui concerne les expériences d'autodiffusion, contrairement à ce qui se passe pour les métaux c. f. c. où le mécanisme de diffusion par lacunes est clairement établi, on ne peut en retirer d'informations sûres concernant les lacunes. En effet la relation :

$$Q = E_{ml} + E_{fl} \quad (1)$$

n'est pas nécessairement valable pour les métaux cubiques centrés. La diffusion par interstitiels n'est en effet sans doute pas négligeable dans ces métaux. Nous y reviendrons dans le paragraphe I.1.3.3.

Dans le cas du tungstène, Q est connu avec une certaine ambiguïté puisque les 3 mesures publiées donnent respectivement 5,23 eV [5], 6,6 eV [6] et 6,1 eV [42].

En ce qui concerne les trempes, elles sont réalisées dans l'hélium II: SCHULTZ [7] le premier a déterminé par résistivité une enthalpie de formation de la lacune dans le tungstène de 3,3 eV ; GRIPSHOVER [31] dans une étude récente du même type propose 3,6 eV.

Ces valeurs sont à rapprocher de celles de KRAFTMAKHER et STRELKOV [8] qui en utilisant la méthode (2) ci-dessus arrivent à une valeur de 3,1 eV. Cette valeur, nous l'avons déjà laissé entendre, est sujette à de fortes réserves, car cette méthode conduit à une concentration à l'équilibre au point de fusion de l'ordre de 10^{-2} , soit 100 fois supérieure à la concentration avancée par SCHULTZ. Ceci tient à ce que l'on néglige la contribution due à l'anharmonicité des vibrations atomiques à la chaleur spécifique du réseau, alors que ce terme est prépondérant dans la déviation de la chaleur spécifique mesurée.

Pour ce qui est de l'énergie de migration, GALLIGAN et al. [9] ont permis de préciser en utilisant la méthode (3), mentionnée plus haut, sur du tungstène trempé ou irradié par les neutrons que si l'interstitiel semblait migrer lors du stade III soit vers 650 K, la lacune ne bougerait que pendant le stade IV. Ceci correspondrait à une enthalpie de migration de 3,3 eV pour la monolacune, soit à peu près la même valeur que pour l'énergie de formation.

On constate que la relation (1) est grossièrement vérifiée, mais compte tenu des grosses incertitudes sur chacun de ces termes, il serait hasardeux d'entirer une conclusion concernant le mécanisme de diffusion dans le tungstène.

Nous ne quitterons pas le domaine des lacunes sans citer la proposition faite par GREGORY en 1963 [10]. Cet auteur, s'appuyant sur des calculs de HARVEY BROOKS [11] conduisant à un rapport $\frac{E_f}{E_m}$ nettement inférieur pour un métal cubique centré à ce qu'il est dans un métal c.f.c.,

prévoyait l'échec de toute expérience de trempe dans les métaux qui nous intéressent ici. L'expérience a, pour le moins, démenti la validité du critère de GREGORY du moins pour ce qui est des éléments de la colonne VI.

I. 1. 3. 2 - Les autres défauts - Interprétation des stades de recuit.

Comme pour les métaux cubiques à faces centrées, nombreuses sont les études portant sur la guérison de la résistivité ou de toute autre propriété caractéristique des défauts ponctuels. On peut en effet essayer d'identifier les défauts responsables de tel ou tel stade de recuit en déterminant l'énergie d'activation qui y correspond.

Les premiers résultats de ce genre ont été proposés par les groupes de Oak Ridge [12], Harwell [13] et Saclay [14], vers les années 1958-60, à la suite d'expériences d'irradiations. Nous montrons sur la figure 2 la courbe typique de guérison du tungstène donnée par NEELY [22]. On y distingue un important stade I vers 70°K, un stade II assez large agrémenté de sous-stades mal définis, puis le stade III très important ; les stades supérieurs ne sont pas visibles ici.

On retrouve le stade III et le stade correspondant à la recristallisation (900°C pour le tungstène) dans une guérison après écrouissage [43]. Plusieurs auteurs ont tenté de relier les températures des pics de guérison à la température de fusion du métal considéré. En fait, on ne peut pas déterminer de coordonnées réduites T/T_f constantes pour ces différentes abscisses, quel que soit le métal. Néanmoins, le stade III se produit en général entre 0,15 et 0,20 T_f .

L'interprétation de ces stades a longtemps été controversée et continue de l'être. Nous nous garderons bien de prendre parti dans cette querelle d'Ecoles. Signalons cependant que jusque vers 1962, les lacunes étaient censées migrer pendant le stade III tandis que les interstitiels auraient été responsables du stade I [18].

Cette interprétation est contestée actuellement par l'école de Stuttgart et le groupe de NIHOUL [15]. En s'appuyant notamment sur des observations par émission de champ [19], ils font appel à un modèle d'interstitiels à configurations différentes migrant respectivement dans le stade I et le stade III.

Ceci est en fait difficile à soutenir car cette hypothèse supposerait une combinaison des différences d'énergies et entropies de formation qui aurait peu de chances de se produire simultanément dans plusieurs métaux.

DI CARLO [20] a étudié le stade I dans le détail et a montré qu'il se subdivisait en multiples sous-stades. Comme pour les métaux à structure c.f.c., on peut expliquer ce phénomène classique par l'autodestruction des paires de Frenkel plus ou moins proches.

D'autre part, il semble probable qu'il n'existe pas de crowdion stable dans le tungstène, c'est-à-dire d'interstitiel dissocié suivant $\langle 111 \rangle$.

Le problème de l'interprétation des stades est encore compliqué par l'influence toujours marquante des impuretés. Certains auteurs mettant en cause la pureté des matériaux étudiés jusqu'alors avaient avancé que le stade III pourrait bien être occasionné par la migration de défauts extrinsèques; cette hypothèse semble démentie par des expériences dues à SCHULTZ [21] sur du tungstène soigneusement décarburé irradié par les neutrons, de même que par les récents résultats de NEELY déjà cités, sur du tungstène irradié aux électrons.

En ce qui concerne les stades supérieurs (IV, V et VI), la microscopie électronique constitue un outil de choix pour déterminer la nature des défauts qui migrent à ces températures. Citons en particulier les travaux de EYRE dans le fer [23], de MOTEFF [24] et MEAKIN [25] dans le molybdène et le tungstène. On en déduit une tendance générale à la destruction des amas de lacunes dans le stade V et des amas d'interstitiels au cours du stade VI.

I. 1. 3. 3. - Propriétés de diffusion - Volumes de formation.

Certains métaux cubiques centrés se caractérisent par une autodiffusion "anormale" c'est-à-dire n'obéissant pas à la loi d'Arrhénius. Si on porte le coefficient de diffusion D en fonction de $1/T$, la courbe n'est pas assimilable à une droite et on est amené à déterminer 2 énergies d'activation différentes suivant le domaine de température où l'on se place. Ceci

est particulièrement caractéristique dans le cas des métaux de la colonne IV (Ti β , Zr β , Hf).

Pour ce qui est du tungstène, si on écarte la première valeur de Q donnée ci-dessus [5] qui est incertaine, on peut affirmer que le comportement de ce métal est normal et qu'un seul mécanisme peut rendre compte de l'autodiffusion. Q , voisin de 6 eV satisfait assez bien la relation empirique $Q \simeq 34 T_f$. D_0 coefficient de diffusion est de l'ordre de $1 \text{ cm}^2/\text{s}$.

Il est intéressant de noter le cas particulier du plutonium cubique centré dans la phase ϵ pour lequel CORNET [98] a trouvé un volume d'autodiffusion fortement négatif (-34% du volume molaire). Nous rapprocherons cette donnée du récent résultat de PONSOYE [91] concernant le volume de formation d'une paire de Frenkel dans le tungstène, obtenu par fluage sous irradiation aux P.F.. Ce volume est vraisemblablement très faible, environ 0,16 volume atomique.

CORNET invoque une promotion d'électrons sur certains ions de la phase ϵ du plutonium, ce qui semble tout à fait improbable pour le tungstène, compte tenu de sa structure électronique.

On trouvera une revue exhaustive des problèmes de diffusion dans les matériaux cubiques centrés dans l'ouvrage donné en référence [99].

1.1.5 - Propriétés des défauts ponctuels.

Le tableau 3 ci-dessous rassemble quelques données utiles relatives aux défauts ponctuels dans les métaux cubiques centrés.

Propriétés des défauts ponctuels (résumé).

- TABLEAU 2 -

		W	Mo	Nb	Ta	Fe- α	Observations et Références
T_f °C		3350	2620	2468	2996	1535	
Energie autodiffusion (eV)		5,2	4,0	4,1	2,9	2,5	[5]
		6,6	4,8	4,6	4,4	2,9	[6]
		6,1					[42]
LACUNES	E_{fv} (eV)	(3,1)	(2,2)	(2,0)	(2,9)	-	chaleur spécifique [8]
			2,5				trempe + microscopie électronique [26]
		3,3					trempe dans l'He II + résistivité [7]
		3,6					[31]
	S_f/k	1,4					} trempe de lacunes [7]
	C_o	$1,1 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-5}$			trempe + microscopie électronique [26]	
		$(2,7 \cdot 10^{-2})$	$(4,3 \cdot 10^{-2})$	$(1,2 \cdot 10^{-2})$	$(0,8 \cdot 10^{-2})$	-	chaleur spécifique [8]
	E_{mv} (eV)	3,3					stade IV, V après écrouissage [24]
		3,3					
	Interstitials						
{	dissocié $\langle 110 \rangle$	1,07				0,33	} Théorie [28]
	E_{mi} (eV)						
{	crowdion	0,05				0,04	} [29]
	E_{mc} (eV)						
Stade III	T_K°	650	450	(?)	170 (?)	190 (?)	valeurs moyennes
	E_m	1,7 1,95	1,3			0,6	

* en prenant pour résistivité par at. % de lacunes $\rho_v = 2,5 \mu\Omega\text{-cm/at. \%}$ [30].

I. 2 - LES DISLOCATIONS DANS LA STRUCTURE CUBIQUE CENTREE.

I. 2. 1 - Dislocations parfaites.

Le vecteur du réseau cristallin le plus court dans une structure cubique centrée joint un sommet du centre du cube élémentaire d'arête a . La dislocation parfaite la plus probable et qui est effectivement observée dans la pratique $\sqrt{3}a/2$ présente donc un vecteur de Burgers du type $\frac{a}{2} \langle 111 \rangle$, de module $\frac{a\sqrt{3}}{2}$. Dans le cas du tungstène a vaut $3,17 \text{ \AA}$ et $|\vec{b}|_{\frac{a}{2} \langle 111 \rangle} = 2,74 \text{ \AA}$. La figure 3 montre les 8 vecteurs possibles de la famille $\frac{a}{2} \langle 111 \rangle$ qui forment une bipyramide dans l'espace.

On peut imaginer également des dislocations du type $a \langle 100 \rangle$ correspondant aux arêtes du cube. Bien que moins favorables sur le plan énergétique d'après le critère de Frank, ce type de dislocations peut se former dans certaines conditions, notamment par combinaison de deux dislocations de vecteur $\frac{a}{2} \langle 111 \rangle$ suivant le schéma.

$$\frac{a}{2} \langle 111 \rangle + \frac{a}{2} \langle 1\bar{1}\bar{1} \rangle \rightarrow a \langle 100 \rangle$$

D'après COTTRELL, la dislocation résultante doit normalement être peu mobile du fait de sa forte friction de PEIERLS-NABARRO. Elle peut se former soit par glissement soit par montée d'une dislocation de départ jusqu'à intersection.

I. 2. 2 - Dissociations possibles - Plans de glissement.

Alors que dans une structure c.f.c. les dislocations parfaites ne peuvent se dissocier que sur un plan $\{111\}$, dans un matériau cubique centré une dislocation $\frac{1}{2} \langle 111 \rangle$ peut choisir entre les plans de type $\{110\}$ ou $\{112\}$ pour opérer sa dissociation.

a) Partielles dans des plans $\{110\}$.

La dissociation la plus stable d'une parfaite dans un seul plan $\{110\}$ a été proposée indépendamment par COHEN et CRUSSARD $\sqrt{3}a/2$ (cf. figure 4) :

$$\frac{a}{2} \langle 111 \rangle \rightarrow \frac{a}{8} \langle 110 \rangle + \frac{a}{4} \langle 112 \rangle + \frac{a}{8} \langle 110 \rangle \quad \text{type A}$$

Si la dislocation est vis elle peut se dissocier sur les trois plans $\{110\}$ suivant la réaction de KROUPA :

$$\frac{a}{2} \langle 111 \rangle \rightarrow \frac{a}{8} \langle 011 \rangle + \frac{a}{8} \langle 101 \rangle + \frac{a}{8} \langle 110 \rangle + \frac{a}{4} \langle 111 \rangle \quad \text{type B}$$

b) Partielles dans des plans $\{112\}$.

HIRSCH [34] a montré que la dissociation d'une dislocation parfaite est possible selon le schéma :

$$\frac{a}{2} \langle 111 \rangle \rightarrow \frac{a}{3} \langle 111 \rangle + \frac{a}{6} \langle 111 \rangle \quad \text{type A'}$$

Pour une dislocation vis, la dissociation sur deux plans (112) s'écrit :

$$\frac{a}{2} \langle 111 \rangle \rightarrow \frac{a}{6} \langle 111 \rangle + \frac{a}{6} \langle 111 \rangle + \frac{a}{6} \langle 111 \rangle \quad \text{type B'}$$

On a formation d'une faute tripode - qui a un effet comparable au verrou de LOMER-COTTRELL dans les c.f.c., la configuration formée étant sessile et représentant un obstacle au glissement.

On a tenté de relier des réactions de dissociation aux systèmes de glissement observés dans les métaux c.c.

On rencontre expérimentalement de nombreux plans de glissement $\{110\}$, $\{112\}$, $\{113\}$, $\{123\}$ et même des glissements de direction non cristallographique. Les dislocations vis étant les seules à pouvoir changer de plan pendant le glissement, elles contrôlent probablement la déformation plastique d'un métal c.c. En particulier au cours du glissement la transition d'une configuration glissile (par dissociation de type A ou A') à une configuration sessile (dissociation de type B ou B') et la transformation inverse peuvent rendre compte des nombreux glissements déviés observés.

Nous ne rentrerons pas dans les détails compliqués des mécanismes proposés. Citons cependant le modèle de SESTAK et al. [35] sur le glissement composite du type A-B ou A'-B' étayé sur des expériences de déformation lente de monocristaux de Fe-Si à faible teneur en silicium. ESCAIG pour sa part [36] a étudié plus particulièrement la contrainte de cisaillement externe à appliquer pour transformer la configuration sessile (B ou B') des segments vis de dislocations initiales en une configuration glissile par dissociation A ou A'. La dépendance de la contrainte critique résolue avec la température rend bien compte des expériences.

1.2.3 - Maclage.

Nous avons vu comment on peut obtenir des dislocations imparfaites $\frac{a}{6} \langle 111 \rangle$. Celles-ci sont associées aux macles de déformation. En effet, les métaux cubiques centrés se maclent abondamment à basse température sous l'effet d'une déformation rapide. La cristallographie est la même pour tous ces métaux, le système de maclage étant du type $\langle 112 \rangle \{ 111 \}$.

L'empilement $\{ 112 \}$ peut se représenter par la séquence ABCDEFABC ... La macle est produite par un cisaillement de la quantité $\frac{a}{6} \langle 111 \rangle$ dans chaque plan successif, correspondant au déplacement des dislocations partielles annoncées ci-dessus. Nous empruntons à WEERTMAN [37] le schéma de la figure 5 qui illustre un défaut d'empilement dans un plan $\{ 112 \}$ dans une structure cubique centrée. Le plan de la figure est $(1\bar{1}0)$. Le nouvel empilement réalisé est du type ABCDEF/AB/ABC ...

En plus des mécanismes de formation des partielles associées aux macles déjà mentionnés, celles-ci peuvent être aussi nucléées de façon homogène par une forte concentration locale de contraintes. Ceci peut se produire par exemple autour d'une inclusion, en tête d'un empilement ou sur le bord d'une lame mince.

Enfin, il est intéressant de rappeler ici la théorie de SLEESWYK [38] relative aux "dislocations émissaires" directement reliées au maclage des métaux cubiques centrés.

A la suite d'une étude sur le maclage dans le fer, cet auteur a émis l'hypothèse que des macles croissant dans un plan $\{ 112 \}$ devait être précédé par un empilement tridimensionnel de dislocations de glissement émissaires. Il explique ceci par le fait qu'en moyenne une sur trois des dislocations de macle du joint non-cohérent gagne à se dissocier sous l'effet des contraintes accumulées près de la pointe de cristal maclé en train de croître. Cette dissociation redonne une dislocation parfaite par la réaction :

$$\frac{a}{6} \langle 111 \rangle \rightarrow \frac{a}{2} \langle 111 \rangle - \frac{a}{3} \langle 111 \rangle .$$

La dislocation émissaire laisse ainsi derrière elle un joint de macle non-cohérent résiduel à énergie réduite, composée d'une dislocation $\frac{a}{3} \langle 111 \rangle$ pour deux dislocations de macle classiques $\frac{a}{6} \langle 111 \rangle$.

Ceci a été ensuite mis en évidence par de belles observations de microscopie électronique en particulier dans un alliage molybdène-rhénium [39].

I.3 - PROPRIETES CARACTERISTIQUES DES METAUX CUBIQUES CENTRES.

Pour terminer ce survol des propriétés concernant les défauts cristallins, nous voudrions énumérer quelques caractères spécifiques relatifs aux propriétés mécaniques des métaux qui nous concernent.

I.3.1 - Point de transition ductile-fragile.

Les métaux cubiques centrés présentent la particularité de voir leur fragilité brutalement accrue en dessous d'une certaine température appelée point de transition ductile-fragile. Celle-ci dépend beaucoup de la pureté du matériau et des traitements subis antérieurement à l'essai. Pour le tungstène ce point se situe vers 150 °C.

Corrélativement, on constate une chute brutale de la limite élastique au delà de la température de transition. La figure 6 illustre cet effet pour de nombreux métaux réfractaires cubiques centrés. Le cas du nickel y est porté à titre de comparaison.

I.3.2 - Loi de Petch.

Cette loi relie la variation de la limite élastique à la taille moyenne des grains du métal. Elle a d'abord été établie pour les aciers. Elle s'exprime par :

$$\sigma_y = \sigma_i + k_y \cdot d^{-1/2}$$

où σ_y est la limite élastique et d la taille du grain. σ_i correspond à la force de PEIERLS-NABARRO du réseau. Quant à k_y il représente la force d'ancrage des dislocations ; elle dépend fortement de la taille du réseau de Frank que les dislocations forment dans le métal.

Dans le domaine fragile σ_F peut s'exprimer de façon analogue avec un coefficient k_F . Ceci suggère que les empilements de dislocations formés à basse température induisent des accumulations de contraintes suffisantes pour initier la fracture. STROM [41] a développé sur ces bases une théorie de la fracture fragile.

- TABLEAU 3 -

1.3.3 - Propriétés physiques du tungstène.

		Grandeur physique	Valeur		Unité	Symbole	
Cristallographie	N° atom.	Masse at.	74	185		Z	A
	paramètre		3,16		Angstroems	a	
	vecteur de Burgers		2,74		Angstroems	b	
	volume atomique		15,7		Angstroems-cube	ω	
	densité		19,3			ρ	
Elasticité	module de cisaillement		$16 \cdot 10^{11}$		dynes/cm ²	μ	
	coeff. de Poisson		0,30			ν	
	compressibilité		0,29		mm ² /kg	χ	
	énergie de surface à $\Theta = \Theta_f$		2500		ergs/cm ²	γ_s	
PROPRIETES	Thermiques	température de fusion	3300		°C	θ_f	
		chaleur spécifique à vol. constant	0,03		cal/g/°C	C_v	
		coeff. dilatation à 20 °C	$4,5 \cdot 10^{-6}$		K ⁻¹	α	
		conductibilité thermique	0,416		cal/cm/s	λ	
	Electriques	température de Debye	380		°C	θ_D	
		résistivité 20 °C	$5,3 \cdot 10^{-6}$		cm	ρ_{20}	
		coeff. de résistivité à 20 °C	$4,8 \cdot 10^{-3}$		K ⁻¹	$\partial \rho / \partial \theta$	
	Méca-niques	limite élastique	70		kg/mm ²	σ_y	
		charge à la rupture	90		kg/mm ²	σ_R	
	Magnétisme	Suscept. magnétique	$59 \cdot 10^{-6}$		e. m. u.	χ	

Chapitre II

LE TUNGSTENE EN MICROSCOPIE ELECTRONIQUE

Un métal donne par transmission une image dont le contraste s'interprète par l'interférence du faisceau électronique transmis et des faisceaux diffractés par les plans réflecteurs. Ceci permet, en particulier, d'étudier la sous-structure d'un échantillon, c'est-à-dire toutes les singularités et imperfections du réseau qui ont pour effet de distordre ces plans réflecteurs et qui donnent ainsi lieu à un contraste caractéristique. Pour que cette observation soit possible, il est nécessaire que le métal soit transparent aux électrons ; son épaisseur ne doit pas dépasser quelques centaines d'angströems (une dizaine de distances d'extinction).

Le premier problème est donc d'amincir le matériau pour l'obtention de lames minces.

II. 1 - FABRICATION DE LAMES MINCES DE TUNGSTENE.

II. 1. 1 - Matériaux utilisés.

Les expériences qui sont exposées dans ce travail ont porté sur 3 types de tungstène auxquels nous nous référons par les symboles A, B, C par pureté croissante. Le tableau ci-dessous donne des indications sur la forme des échantillons et leur pureté respective.

Qualité	Forme géométrique	Pureté globale % pondéral	Analyse des impuretés 10^{-6} pond.							Fournisseur
			H	O	N	C	Fe	Ni	Mo	
A	barreau $\varnothing$ 3 mm	99,999	0,1	0,8	0,1	5	0,01	0,02	0,1	M. R. C.
B	ruban 10μ d'épaisseur	99,98					50	50	100	Cellerin
C	plaque 100μ d'épaisseur	99,95 [*]	10	50	50	50	50	80	100	Metallwerk

* Les $110 \cdot 10^{-6}$ restants du matériau C sont constitués d'impuretés résiduelles de distillation.

II. 1. 2 - Obtention des lames.

Nous avons opéré de façon différente suivant qu'il s'agissait de rubans polycristallins (cas général) ou de pastilles découpées à partir de barreau monocristallin (pour certaines expériences de trempe).

Rubans : Nos amincissements et polissages ont tous été effectués dans un bain de soude à 3% en poids, suivant en cela les indications de nombreux auteurs [44]. Les lames minces sont obtenues en laissant l'échantillon se dissoudre presque complètement dans le bain et en recueillant celles-ci dans le fond de la cellule. La tension de travail est de 22 volts. Pour les échantillons épais (100μ) le préamincissement peut être accéléré en opérant à 28 volts. Une cathode de platine est parfois recommandée, mais en fait une cathode en tungstène fonctionne tout aussi bien. Il est nécessaire d'agiter en permanence l'échantillon en cours d'amincissement afin de retirer la couche visqueuse.

Une tension trop élevée se traduit par des figures d'attaque qui se présentent comme des trous carrés dont les bords ont des directions cristallographiques simples.

Lorsque le métal est bien recuit, les lames se font plus difficilement. Ceci s'explique par la ségrégation des impuretés aux joints de grains

pendant le traitement thermique ; au lieu de s'amincir de façon homogène, l'échantillon se découpe le long des joints. Il est recommandé dans ce cas d'abaisser la tension de polissage à 16 volts.

Pour ce qui est du tungstène irradié, la technique est la même, une protection de plomb étant toutefois nécessaire pour les échantillons très actifs.

Les lames minces sont rincées à l'eau distillée avant introduction dans le microscope.

- Pastilles monocristallines : Les échantillons se présentent sous forme de petits disques de 0,5 mm d'épaisseur obtenus par tronçonnage du barreau de 3 mm de diamètre. Pour les observer, nous avons dû réaliser un appareillage spécial. En effet, l'amincissement décrit ci-dessus ne peut s'appliquer ici. Le dispositif employé utilise la méthode du polissage par double jet d'électrolyte proposé par YOUNGBLOOD [45] et amélioré par BOURRET [46]. On arrive ainsi à percer la pastille en son centre de telle manière que les bords du trou soient assez minces pour être observés par transmission. Une cellule photo-résistante coupe automatiquement le courant de polissage dès qu'elle perçoit la lumière envoyée dans l'axe de l'un des jets d'électrolyte à travers le trou formé. Les diamètres de trou sont de l'ordre de 100 microns. La pastille est alors directement introduite dans le microscope.

On trouvera tous les détails expérimentaux sur le fonctionnement de notre dispositif dans le rapport cité en référence [47].

La figure 7 en montre une photographie d'ensemble.

II.2 - LES OBSERVATIONS AU MICROSCOPE.

II.2.1 - Le microscope - Ses performances.

Les observations dont nous rendons compte dans ce chapitre et les suivants ont toutes été faites sur un Siemens Elmiskop 1A fonctionnant sous 100 kilovolts. Il est équipé d'un porte-objet goniométrique de conception originale conçu et réalisé par LETEURTRE [48], qui permet d'incliner la lame de 8° dans toutes les directions. Si ce basculement est un peu faible pour étudier la nature des grosses boucles, il est très suffisant pour toutes les études de contraste classiques en microscopie.

La platine de translation permet des déplacements de $\pm 1,3 \text{ mm}$ par rapport à son centre, c'est-à-dire que la surface explorée dépasse 6 mm^2 .

Le pouvoir séparateur du microscope ainsi modifié est environ de 20 Å , dans les conditions normales de travail.

II.2.2 - Caractéristiques du tungstène en microdiffraction.

Rappelons que le cliché obtenu par microdiffraction avec les plans réflecteurs d'indice $\{hkl\}$ peut s'interpréter comme la section pseudo-plane du réseau réciproque du cristal perpendiculairement au faisceau.

Les diagrammes relatifs au tungstène se dépouillent donc comme sections d'un réseau cubique à faces centrées.

Facteurs de structure : Le facteur de structure relatif à la réflexion $\{hkl\}$ s'exprime en fonction du facteur de diffusion atomique f par :

$$\begin{aligned} F_{hkl} &= f(\theta) \left\{ e^{2\pi i (0)} + \exp 2\pi i \left[\frac{h}{2} + \frac{k}{2} + \frac{l}{2} \right] \right\} \\ &= f(\theta) (1 + e^{\pi i (h+k+l)}) \end{aligned}$$

$$\text{Soit : } \begin{cases} F_{hkl} = 2 f(\theta) & \text{pour } h+k+l \text{ pair} \\ F_{hkl} = 0 & \text{pour } h+k+l \text{ impair.} \end{cases}$$

Il y a donc extinction systématique d'une tache sur deux dans les diagrammes de tungstène (et de cubiques centrés en général).

Distances d'extinction :

HIRSCH et al. [49] ont établi l'expression donnant la période du battement entre le faisceau direct et le faisceau diffracté par une famille de plans de normale g , c'est-à-dire la distance d'extinction ξ_g .

$$\xi_g = \frac{\pi \cdot V \cdot \cos \theta}{\lambda F_{hkl}}$$

Compte tenu de l'expression de F_{hkl} ci-dessus, nous avons calculé les valeurs de ξ_g pour les différents plans réflecteurs. Elles sont reportées dans le tableau ci-dessous, en angströms :

Plan réflecteur $\{hkl\}$	λ_g Å
$\{110\}$	165
$\{200\}$	225
$\{211\}$	265
$\{220\}$	310
$\{310\}$	360
$\{222\}$	425
$\{321\}$	470
$\{400\}$	500
$\{411\}$ $\{330\}$	540
$\{420\}$	575

N.B.- Nous proposons dans la figure 8 un abaque permettant de calculer graphiquement la distance d'extinction de n'importe quel plan réflecteur dans le tungstène, à partir du module du vecteur $[hkl]$.

II. 3 - ILLUSTRATIONS DE LA SOUS-STRUCTURE.

II. 3. 1 - Observations en microscopie optique.

La planche de la figure 9 illustre l'aspect du tungstène (qualité C) à un grossissement optique.

La photographie 9 (a) montre un échantillon brut de laminage. Les directions de laminage croisé effectuées à haute température se retrouvent dans la structure en losange très visible sur cette photographie. Sur la micrographie 9 (b) on a utilisé le réactif de Millner et Sass pour faire apparaître des figures d'attaque à l'émergence des dislocations. On voit qu'à 1 200 °C il y a eu recristallisation mais qu'il reste un souvenir de la texture initiale. Si on monte à haute température (> 1 500 °C) il se produit une attaque thermique et la structure de départ disparaît. La micrographie 9 (c) illustre le résultat d'un traitement de recuit à une température de 1 600 °C sous un vide de 10^{-7} torr.

II. 3. 2 - Microstructure.

II. 3. 2. 1 - Aspects caractéristiques.

Le tungstène brut de laminage est évidemment très écroui. La figure 10 en donne une illustration. Il se forme des parois de dislocations très abondantes. Lorsqu'on recuit le métal, vers 900° on a début de recristallisation, comme on le voit sur la figure 11. Une structure cellulaire se développe qui préfigure les futurs grains du métal recristallisé. La diamètre moyen de ces cellules est de 2 microns.

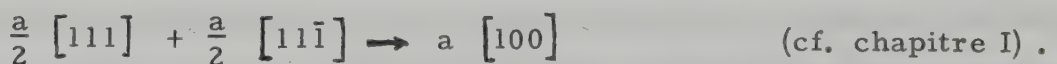
Si on porte le métal à 1 200°C, de nombreux sous-joints apparaissent, les grains se forment et grossissent progressivement. La figure 12 donne un exemple typique de sous-joints dans un échantillon recuit une heure à 1 100°C.

A haute température, les grains se vident de leurs dislocations résiduelles et les joints sont polygonisés. La photographie n°13 montre l'aspect de tungstène recuit 10 minutes à plus de 2 000°C.

II. 3. 2. 2 - Dislocations et autres défauts du réseau.

Les dislocations étant parfaites sont glissiles, mais il est très difficile de les faire glisser dans le microscope du fait de la forte valeur du module d'élasticité du tungstène. Quand l'échantillon est très écroui, les dislocations présentent des formes tourmentées ; la figure 14 montre un cas de formation de dipôle par écrouissage laissant derrière lui une petite boucle allongée verticale . Lorsque les dislocations sont formées par pliage, elles sont généralement très longues et rectilignes (figure 15).

Très souvent après un léger recuit, des réseaux de dislocation se forment par la réaction :



Nous en montrons un exemple caractéristique sur la micrographie n°16. Le réseau est presque hexagonal parfait. On retrouve sensiblement les angles calculés par CARRINGTON dans le fer [50].

Les autres défauts cristallins sont rarement observés dans le tungstène. En effet, les macles par exemple n'ont jamais été observées par l'auteur bien que NAKAYAMA et al. [51] signalent la présence de micro-macles dans du tungstène recuit à 700°C.

De même, les fautes d'empilement sont pratiquement inexistantes ; nous avons souligné dans le premier chapitre que leur énergie était, probablement dans tous les cas, très élevée et la seule possibilité de les observer serait un abaissement artificiel de l'énergie de faute par des impuretés.

Nous illustrons dans la figure 17 un cas d'observation de défaut plan dû probablement à la précipitation d'impuretés après un recuit à 2600°C pendant une heure.

Chapitre III

TREMPE DE DEFAUTS PONCTUELS DANS LE TUNGSTENE

En portant un métal à haute température, on atteint une concentration à l'équilibre en lacunes non négligeable, typiquement 10^{-4} atomique. Si on réussit à le tremper assez rapidement pour que les lacunes ne migrent pas toutes vers les puits existants, on peut arriver à "geler" à la température ordinaire une concentration importante de lacunes hors équilibre. On peut contrôler la migration ultérieure de ces défauts en effectuant des recuits jusqu'à obtenir une condensation en boucles de dislocation.

III.1 - DIFFICULTES DU PROBLEME.

Dans les métaux de transition cubiques centrés le problème expérimental est particulièrement ardu. Déjà GREGORY en 1963 prévoyait que les trempes de lacunes dans ces métaux exigeraient des vitesses de trempe très élevées (supérieures à $500\,000^\circ/\text{s.}$ pour le niobium). En fait ces estimations étaient pessimistes du fait de l'erreur sur les valeurs de E_{fl} et E_{ml} qu'il avait choisies.

En vérité les difficultés tiennent à deux points essentiels.

1) la forte énergie de formation de la lacune : E_{fl} vaut 3,3 eV dans le tungstène ce qui impose de monter à des températures supérieures à $3\,000^\circ\text{C}$, si on veut atteindre une concentration C_L avant trempe au moins égale à la moitié de la concentration au point de fusion.

2) la mobilité des lacunes. Certes l'énergie de migration E_{ml} semble être relativement élevée ($2,5\text{ eV} < E_{ml} < 3,5\text{ eV}$) mais la trempe se fait depuis une température très élevée.

Ceci se traduit donc expérimentalement par la nécessité de réaliser la plus forte vitesse de trempe possible. Ceci fait intervenir plusieurs paramètres :

- le choix du bain : nous verrons que les bains classiques ne suffisent pas, leurs caractéristiques thermiques ne correspondant pas aux performances demandées.

- l'épaisseur de l'échantillon : il faut ici trouver un compromis. Une faible épaisseur améliore la vitesse de trempe, mais les surfaces d'un échantillon trop mince constituent un "piège à lacunes" abusif. D'autre part, le ruban est beaucoup moins résistant aux chocs et on ne peut éviter un écrouissage important. Ceci a pour effet d'augmenter la densité de dislocations et de balayer les lacunes formées. Une épaisseur de 100 μ nous a semblé optimale.

L'autre difficulté pratique importante réside dans l'obtention simultanée d'une très haute température ($> 3\,000^{\circ}\text{C}$) et d'un vide poussé. Nous verrons comment nous avons tenté de concilier ces différents impératifs dans la réalisation de notre appareillage.

III.2 - BAINS DE TREMPE UTILISES.

Le bain idéal doit répondre à plusieurs exigences :

- a) permettre la vitesse de trempe la plus importante possible,
- b) écrouir le moins possible l'échantillon,
- c) ne pas contaminer chimiquement le matériau à tremper, par diffusion à haute température, lors de l'immersion.
- d) permettre une mesure de la vitesse de trempe.

Nous avons essayé beaucoup de types de bains différents. Aucun n'est idéal et ne satisfait à toutes les conditions précédentes.

III.2.1 - Gaz liquéfiés.

La vitesse de trempe est bien sûr fonction de l'intervalle entre la température de trempe et la température finale. Ceci nous a conduit à essayer de tremper successivement dans l'azote liquide, puis l'argon liquide, le premier bain présentant l'inconvénient de polluer le tungstène. Ils furent vite abandonnés à cause de la caléfaction importante qui se formait au contact de la lame chauffée par effet Joule. Les vitesses de trempe mesurées à l'oscillographe grâce à une méthode décrite par QUERE [52] étaient environ de 15 à 20 000 degrés/seconde (cf. figure 18).

III.2.2 - Bains métalliques.

L'avantage des bains métalliques réside dans le fait qu'ils permettent de court-circuiter automatiquement le courant de chauffage dans l'échantillon au moment précis où celui-ci pénètre dans le bain de trempe. Ainsi se trouve résolu le problème important de la simultanéité de ces deux opérations. L'appareillage s'en trouve simplifié.

Malheureusement, le bain métallique ne permet pas de mesurer la vitesse de trempe car on ne peut plus faire de mesures électriques sur un échantillon immergé dans un bain conducteur. Trois métaux ou alliages furent tour à tour essayés :

III.2.2.1 - Trempe dans l'alliage de Wood et le mercure.

a) Alliage de Wood :

L'alliage de Wood a pour composition en poids 50% de bismuth, 25% de plomb, 12,5% de cadmium et 12,5% d'étain ; il fond à 70°C. Des trempes ont été effectuées dans ce bain depuis une température de 2 500°C. La couche d'alliage qui mouille l'échantillon après trempe était retirée par dissolution sélective dans l'acide nitrique pur.

Les résultats furent complètement négatifs avec ce type de bain ; même après des recuits d'une heure à des températures allant de 500 à 1 000°C, nous n'avons pas observé de boucles de dislocations comme en témoigne la figure 19 .

b) Mercure.

Le mercure a été ensuite choisi, car c'est le métal qui fond le plus bas ($\theta_f = -38^\circ\text{C}$) et il ne semblait pas devoir y avoir de solubilité notable du mercure dans le tungstène, donc pas de diffusion superficielle à redouter. Par contre l'emploi d'un tel bain a posé des problèmes de manipulation, la vapeur de mercure étant toxique à faible dose.

Ce bain n'a pas non plus permis de tremper suffisamment de lacunes pour permettre des observations d'amas ou de boucles au microscope électronique. Par contre, on a pu constater une contamination importante des rubans trempés qui ne peut être attribuée qu'au mercure. La figure 20 montre l'aspect typique des précipités observés. De forme sphérique, ils présentent un diamètre moyen de 600 Å . Ce résultat indique qu'à haute température le

mercure doit diffuser très rapidement à coeur du ruban de 100 microns trempé. Remarquons que NIHOUL utilise le mercure dans un procédé de fabrication de monocristaux de tungstène. Il ne semble pas dans ce cas que la contamination soit très importante [53].

Devant les échecs répétés des bains énumérés ci-dessus, nous eûmes alors recours au gallium qui n'a pas seulement un bas point de fusion ($\theta_F \simeq 29^\circ\text{C}$) mais qui présente de plus les avantages suivants sur le mercure :

a) le domaine liquide du gallium est très large ; il s'étend à la pression ordinaire de 29° à $2\,400^\circ\text{C}$. Or, nous cherchons à éviter tout phénomène de caléfaction pendant la trempe qui a pour effet de remplacer le liquide de trempe par sa vapeur, donc de diminuer la vitesse de trempe [54]. Avec le gallium, nous sommes assurés de limiter cette caléfaction au minimum. Même si on crée quelques bulles - n'oublions pas que l'on trempe depuis plus de $3\,000^\circ\text{C}$ - la forte chaleur latente de vaporisation (870 calories/g au lieu de 70 pour le mercure) limite encore le phénomène.

b) il possède une plus forte chaleur spécifique que le mercure ($0,08\text{ cal/g}$. pour $0,03$ dans le cas du mercure) ce qui limite l'échauffement du bain au voisinage immédiat de la lame.

c) le gallium mouille bien les surfaces métalliques ; le mercure ne mouille pratiquement pas l'échantillon. Le coefficient d'échange thermique est donc surement bien meilleur.

d) le gallium n'a pas de caractère toxique connu.

On voit que les points a), b) et c) laissent présager une plus forte vitesse de trempe.

Ce bain de trempe est le seul à avoir donné des résultats expérimentaux intéressants, comme nous le verrons au paragraphe III.4. Nous décrivons auparavant l'appareillage.

III.3 - DESCRIPTION DE L'APPAREILLAGE DE TREMPÉ.

La figure 22 illustre le fonctionnement de l'appareil. Il est constitué essentiellement d'une enceinte cylindrique (1) dans laquelle on peut réaliser un vide meilleur que 10^{-6} torr. Cette enceinte est refroidie extérieurement par une garde d'azote liquide (2) qui vient piéger les impuretés du vide rési-

duel pendant le recuit qui précède la trempe. Une bride (3) dans laquelle coulisent deux amenées de courant refroidies par une circulation d'eau (4) vient obturer le dispositif. Au bout de ces tiges sont fixées les mors (5) en molybdène fritté qui tiennent l'échantillon. Différents types de mors ont été étudiés suivant que l'on trempe un ruban ou un barreau.

Des pastilles de tungstène (6) sont interposées entre les mors et l'échantillon pour éviter la diffusion du molybdène dans le tungstène à haute température.

L'échantillon est chauffé par effet Joule ; on dispose à cet effet d'une alimentation (7) qui délivre une forte intensité. Elle fournit jusqu'à 800 ampères en continu et 600 ampères en alternatif, sous une tension n'excédant pas 25 volts en charge.

Le rayonnement de l'échantillon étant très important, il a fallu protéger le presse-étoupe et les joints qui assurent le vide dans l'appareil par des écrans de tantale poli (8).

Les échantillons : Nous en avons trempé de deux types :

- des rubans : épaisseur 11 microns (± 1) qualité B
 épaisseur 100 microns qualité C
- du barreau : monocristal de 3 mm de diamètre qualité A .

Les rubans très minces durent être vite abandonnés, du fait de leur trop faible épaisseur : les chocs d'origine thermique et mécanique désagrègent le ruban en petits éclats difficilement exploitables.

Mesure de température : Nous mesurons la température de l'échantillon pendant le recuit qui précède la trempe par un pyromètre optique à extinction de filament, en visant à travers un hublot de quartz (9). Des corrections sont apportées qui tiennent compte de l'émissivité du tungstène ($\approx 0,4$ à $3\ 000^{\circ}\text{C}$) et de l'absorption optique du hublot. En portant un échantillon jusqu'à la fusion, on peut faire un grossier étalonnage du pyromètre et surtout éviter de fondre le ruban destiné à la trempe avant de pénétrer dans le bain.

Le bac de trempe (10) : Le gallium étant couteux, nous avons dû étudier un bac de trempe de dimensions réduites pour limiter le volume du bain. Ce bac est en acier inoxydable : le métal liquide vient araser la partie supérieure du bac de manière à permettre l'écémage des oxydes à la surface du bain, avant la mise sous vide du dispositif. La température du bain

est contrôlée en permanence par un thermocouple gainé de chromel-alumel immergé à mi-hauteur du bac. On peut réchauffer le bac par un enroulement chauffant situé sous le fond de l'appareil, si besoin est. L'azote liquide entourant l'enceinte a en effet tendance à abaisser exagérément cette température.

La figure 23 est une photographie de l'ensemble de l'installation.

III.4 - TREMPE DE LACUNES DANS LE GALLIUM.

III.4.1 - La trempe.

Les opérations sont conduites dans l'ordre suivant :

1) l'échantillon est recuit sous vide dans le dispositif décrit ci-dessus en l'absence du bain afin d'éviter tout risque éventuel de contamination. Dans le cas du gallium, ce risque semble infime, la tension de vapeur du gallium à 500°C étant inférieure à 10^{-6} torr. La température de recuit est suffisante pour recristalliser le matériau et obtenir des grains de taille supérieure à 1 millimètre ($\approx 2\ 000^\circ\text{C}$).

2) on met le bain de gallium en place. Puis l'échantillon est porté progressivement à 3 000°C sans que le vide dépasse jamais 10^{-6} torr. Il est laissé peu de temps à cette température pour éviter à la fois la contamination toujours possible, et une évaporation trop violente du ruban (le taux d'évaporation à 3 000°C du tungstène est tel que l'épaisseur diminue d'un micron par minute environ).

3) l'échantillon est trempé soit manuellement en actionnant la poignée (11) verticalement, soit grâce à de puissants ressorts qui tirent l'équipage mobile violemment vers le bas. Cette dernière méthode présente l'avantage d'être plus reproductible.

Un dispositif annexe permet de couper le courant dans l'échantillon après immersion et de commander d'autre part une électrovanne pneumatique qui isole l'enceinte du groupe de pompage. Ceci évite aux vapeurs de gallium qui se dégagent au moment de la trempe de venir polluer la pompe secondaire de l'installation.

Pendant ces 3 opérations la température des parois est maintenue à la température de l'azote liquide.

La vitesse d'immersion manuelle (ou assistée mécaniquement) a été

mesurée grâce à des enregistrements cinématographiques : elle est de l'ordre de 1 mètre par seconde .

Pour tremper des barreaux, la méthode suivie est identique. Il faut cependant veiller à ne pas faire fondre les mors, si le refroidissement par eau s'avérait insuffisant.

La récupération des rubans trempés ne présente pas de difficulté. La couche de gallium qui mouille la surface est dissoute dans l'acide chlorhydrique pur, puis on enlève par polissage électrolytique la couche de quelques microns qui aurait pu être polluée par diffusion du gallium lors du refroidissement.

III.4.2 - Les recuits après trempe.

Nous avons vu (chapitre I) que les lacunes semblent migrer dans le stade IV (au plus bas pendant le stade III) donc à une température supérieure à 400 °C. Il est donc normal de faire suivre la trempe d'un recuit approprié pour permettre aux lacunes de se rassembler en amas ou en boucles. Des traitements thermiques standard de 1 h. ont été réalisés de 200 en 200 degrés de 400 °C à 1 000 °C dans ces conditions. Un recuit à 800 °C, en prenant le terme entropique de migration $\exp S_m/k$ égal à l'unité, correspond à environ 20 000 sauts élémentaires, soit une distance moyenne parcourue par la lacune de 1 500 Å, si elle n'est pas piégée auparavant.

Tous les traitements thermiques après trempe ont été réalisés en ayant soin d'éviter toute contamination par d'éventuelles impuretés. Le vide était toujours meilleur que 10^{-6} torr.

III.4.3 - Résultats.

Il est très difficile d'obtenir des expériences de trempe très reproductibles. Peuvent varier en effet à l'insu de l'expérimentateur l'homogénéité de l'échantillon, la pureté du bain de trempe et surtout la façon dont se fait l'immersion et l'échange de chaleur.

Nous avons néanmoins obtenu des résultats sur un échantillon en forme de ruban du type C (pureté commerciale).

III.4.3.1 - Aspect au microscope du tungstène trempé.

Le tungstène brut de trempe ne présente aucune boucle à l'observation comme le montre la figure 21 . Un recuit à 400°C, n'est pas suffisant non plus pour mettre en évidence d'amas de taille supérieure au pouvoir de résolution.

Après un recuit à 600°, on voit apparaître (figure 24) des petits points noirs correspondant à des boucles d'environ 60 Å de diamètre. Le métal garde encore le souvenir de l'écrouissage que l'on ne peut jamais éviter tout à fait, comme le montrent les longues dislocations rectilignes observées. La densité de boucles est de $2 \cdot 10^{14}$ boucles/cm³.*

Il faut atteindre la température de 800° pour voir ces boucles grossir notablement ce qui permet une analyse plus précise de leur vecteur de Burgers. La figure 25 montre l'aspect de l'échantillon trempé après un recuit d'une heure à cette température. Les boucles sont bien résolues et ont un diamètre moyen de 150 à 200 Å, leur densité atteint $5 \cdot 10^{14}$ boucles/cm³. Les dislocations ont été déjà partiellement recuites car nous approchons de la température de polygonisation.

On constate un appauvrissement en boucles de lacunes au voisinage des dislocations et des joints de grains comme le montre la figure 26 . La zone dénudée en boucles est de l'ordre de 2 000 Å, c'est-à-dire deux fois environ ce qu'on trouve dans le cas de l'aluminium trempé [55].

Si on continue de recuire l'échantillon à des températures plus élevées les boucles s'évaporent en réémettant les lacunes dans le réseau. A 1 500°, le métal est redevenu vierge de tout amas.

Si on laisse refroidir alors l'échantillon jusqu'à 800°C et qu'on le laisse 1 heure à cette température, les amas ne réapparaissent pas. Ceci prouve qu'il ne s'agit pas de précipités en provenance du bain de trempe, mais bien de boucles de trempe. En effet, dans l'hypothèse inverse, les

* Pour tout ce qui concerne le comptage statistique des boucles de trempe ou d'irradiation, le lecteur voudra bien se reporter au § IV.3.1 qui indique le mode opératoire suivi et les corrections effectuées.

précipités dissous à 1 500°C reprécipiteraient à la température où on les observait initialement.

III.4.3.1.2 - Détermination du vecteur de Burgers et du plan de la boucle.

Le vecteur de Burgers a été déterminé en cherchant à orienter la lame de façon que le contraste de la boucle s'annule presque totalement. On sait que dans ce cas le vecteur de diffraction $\vec{g}$ est tel que $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$. En opérant avec plusieurs vecteurs $\vec{g}$ on peut connaître $\vec{b}$ sans ambiguïté. Cette méthode très classique est compliquée par le fait que les boucles coins induisent un déplacement normal à $\vec{b}$ qui peut contribuer notablement à l'intensité transmise. En particulier même quand $\vec{g} \cdot \vec{b}$ est rigoureusement nul, on peut obtenir un contraste important et même dans certains cas une image anormalement intense si la boucle est au voisinage des surfaces [56].

Nous avons toujours trouvé des boucles parfaites avec un vecteur de type $\frac{1}{2} \langle 111 \rangle$. La figure 27 montre comment on peut de surcroît déterminer le plan de ces boucles. Le plan de la lame est ici voisin de (110). Le vecteur de diffraction est $[002]$.

On distingue les boucles de type A et A' qui sont respectivement dans les plans $(1\bar{1}1)$ et $(\bar{1}11)$ perpendiculaires au plan de la lame. Ceci explique que les boucles vues par la tranche se présentent sous forme de bâtons allongés parallèlement aux traces de ces plans sur la lame (respectivement $[\bar{1}12]$ et $[1\bar{1}2]$).

Les boucles B apparaissent comme des ellipses presque circulaires. Elles sont en effet dans les plans (111) et $(11\bar{1})$ symétriques par rapport au plan de la lame qui font avec celles-ci un angle de 35° environ. Le grand axe de ces boucles est parallèle à la trace commune de ces 2 plans avec la lame soit $[\bar{2}20]$. On remarquera que les segments de dislocation perpendiculaires à $\vec{g}$ sont hors contraste.

On peut donc résumer ces résultats en affirmant qu'on a toujours observé des boucles pratiquement coin à vecteur $\frac{1}{2} \langle 111 \rangle$.

III. 5 - DISCUSSION DES RESULTATS.

On peut interpréter les informations retirées des expériences qui précèdent sur deux plans :

- la géométrie des boucles trouvées par trempe,
- l'évaluation du nombre de défauts trempés.

III. 5. 1 - Géométrie des boucles.

La seule expérience publiée avec laquelle nous puissions comparer utilement nos résultats est celle qu'ont réalisée MEAKIN et LAWLEY [57] sur le molybdène trempé dans l'indium. Après un recuit d'une heure à 400°C, ils ont mis en évidence par microscopie électronique ce qu'ils interprètent comme étant des boucles de trempe. L'analyse de leurs observations les mène à la conclusion que ces boucles se situent dans des plans (100) et qu'elles présentent un vecteur de Burgers de type $\langle 100 \rangle$.

Cette conclusion est pour le moins étonnante ; outre qu'elle est en contradiction avec nos propres observations, elle conduit à imaginer des condensations de boucles de forte énergie (vecteur de Burgers énergétiquement peu probable). Nous voyons deux explications possibles :

- ou bien les amas qu'ont observés ces auteurs ne sont pas des boucles de dislocations mais des précipités plans dont le contraste en microscopie est difficile à distinguer de celui de petites boucles. Dans ce cas l'indium pourrait être responsable de cette précipitation.

- ou bien, ce sont des boucles qui ont bien le vecteur de Burgers indiqué. Nous verrons dans le chapitre V que nous proposons la possibilité de nucléer de telles boucles "anormales" en présence d'une contrainte suffisante. Un fort écrouissage dû à la trempe pourrait être responsable de ce phénomène, mais on voit mal pourquoi la contrainte engendrée serait uniaxiale et aurait de plus la direction requise.

Nos observations sont de plus cohérentes avec la majorité des observations de boucles dans les matériaux cubiques centrés soumis à une irradiation.

III. 5. 2 - Energies de migration et de formation de la monolacune.

Après un recuit à 600°C d'une heure, nous avons observé environ

$C = 2.10^{14}$ boucles par cm^3 . Ceci correspond à une distance moyenne entre boucles $\bar{d}_b \approx \sqrt[3]{\frac{1}{2.10^{14}}} = 1,7.10^{-5}$ cm soit 1700 Å. Cela peut s'interpréter en disant qu'une lacune devra, pour venir se condenser sur une boucle déjà formée, parcourir une distance moyenne d' de 300 distances interatomiques (≈ 1000 Å).

Ce parcours correspond à un nombre de sauts N de l'ordre de d'^2 soit 9.10^4 .

Or N peut s'écrire :

$$N = A \cdot \nu \cdot \exp\left(\frac{S_m^L}{k}\right) \cdot \exp\left(-\frac{E_m^L}{kT}\right) \times t$$

où A est la coordonnée, ν la fréquence de Debye S_m^L et E_m^L les entropies et enthalpies de migration de la lacune, t le temps de recuit. Si on prend $\exp\left(\frac{S_m^L}{k}\right) = 1$ et $T = 973^\circ\text{K}$ on trouve pour E_m^L

$$E_m^L \approx 2,5 \text{ eV}.$$

Cette valeur est cohérente avec ce qu'on trouve dans la littérature (cf. chapitre I). On ne peut attendre de précision d'un tel calcul très simple, mais l'ordre de grandeur est visiblement respecté.

Si nous supposons maintenant qu'après un recuit à 800°C , nous avons condensé le maximum de lacunes hors d'équilibre, nous pouvons évaluer grossièrement le nombre minimal de lacunes formées à haute température et remonter à l'énergie maximale de formation de la lacune.

En effet, les boucles de 180 Å observées contiennent environ 1 600 lacunes. Si nous reprenons le chiffre de 5.10^{14} boucles/ cm^3 , ceci correspond à $7,5.10^{17}$ lacunes/ cm^3 soit à une concentration atomique C_o initiale de $(1,2 \pm 0,8) 10^{-5}$. Cette valeur est à comparer aux 2.10^{-5} trouvés par MEAKIN dans le molybdène.

Or, $E_{f \text{ max.}}^L$ s'écrit aisément sous la forme :

$$E_{f \text{ max.}}^L = kT \left[-2,3 \cdot \log_{10} C_o + \frac{S_F^L}{k} \right].$$

En prenant pour S_F/k , la valeur 1,4 proposée par SCHULTZ nous sommes conduits à :

$$E_{F \text{ max}}^L \approx 3,6 \text{ eV}.$$

Un rapide calcul d'erreur portant sur C_o d'une part et sur S_F^L de l'autre permet de donner cette valeur à 0,4 eV près.

Donc : $3,2 < E_{F_{\max}}^L < 4,0 \text{ eV} .$

Cette fourchette de valeurs est en bon accord avec les données connues, compte tenu qu'il s'agit d'un chiffre maximal. En effet, nous ne pouvons prétendre avoir retenu toutes les lacunes formées au voisinage du point de fusion ; aussi C_o est-il probablement trop faible d'un ordre de grandeur.

Notons que nous avons négligé dans cette évaluation la concentration en bilacunes qui peut sans doute atteindre une fraction non négligeable de C_o . On sait par exemple que dans l'aluminium $\frac{C_{2L}}{C_o}$ atteint 40% au point de fusion [58].

Malheureusement, les données manquent sur l'énergie d'interaction lacune-lacune pour raffiner ce calcul.

Chapitre IV

IRRADIATIONS DE TUNGSTENE

Dans le chapitre précédent nous ne nous sommes intéressés qu'aux lacunes dans le tungstène. Grâce aux irradiations par les neutrons rapides ou les ions, on peut introduire par éjection d'atomes du réseau à la fois des lacunes et des interstitiels en concentration égale (paires de Frenkel).

Ces défauts migrent alors pour venir se condenser en amas tridimensionnels ou en boucles de dislocations visibles par microscopie électronique. Essayer de comprendre à partir des observations les conditions dans lesquelles les défauts créés par un atome primaire s'agglomèrent pour donner naissance à des boucles ou des cavités, tenter de mieux définir la géométrie et les effets thermiques d'une cascade de déplacements, voilà quel sera le but des expériences ci-dessous.

IV.1 - RAPPELS THEORIQUES.

IV.1.1 - Modes de dissipation de l'énergie d'une particule.

On sait que les projectiles utilisés ordinairement pour irradier sont des particules chargées ou non (neutrons, ions, électrons). Celles-ci peuvent perdre leur énergie initiale dans le réseau suivant 2 modes très différents : soit par excitation électronique soit par collisions atomiques.

LINDHARD et al. [59] ont étudié théoriquement ces phénomènes pour des ions énergiques d'une façon très générale, en utilisant le potentiel de Thomas Fermi. A partir des deux hypothèses fondamentales suivantes :

a) On peut complètement séparer les 2 processus de dissipation de l'énergie, c'est-à-dire que l'un des deux mécanismes est toujours prédominant.

b) La particule ne transfère qu'une faible partie de son énergie à l'atome déplacé,

les auteurs ont déterminé quelle était la part ν de l'énergie totale E de la particule dissipée sous forme de collisions atomiques en fonction de E . La courbe $\nu(E)$ est représentée dans le cas de l'uranium sur la figure 28.

Les conclusions à tirer de la théorie de LINDHARD sont de deux ordres :

1°) Une faible partie seulement de l'énergie totale se dissipe en chocs atomiques. Sur les 67 MeV de l'énergie initiale d'un fragment de fission, 5 MeV environ sont utilisés dans les chocs.

2°) Si l'on considère la courbe dérivée $\frac{\partial \nu}{\partial E}$, on constate que la déperdition d'énergie par les collisions est beaucoup plus forte aux faibles énergies, au détriment de la perte par excitation électronique.

Les auteurs aboutissent ainsi à la conclusion qu'une particule de forte énergie arrivant dans un matériau perd les 90% de son énergie initiale sur la plus grande partie de son trajet ; les 10% restants sont dissipés, en fin de parcours, presque exclusivement sous forme de collisions.

La théorie de LINDHARD est celle qui cerne de plus près la réalité, une réserve étant faite toutefois pour l'hypothèse (b). En effet, dans les chocs à énergie transférée maximale T_m (à la limite $T_m = E$ dans un choc de plein fouet entre 2 particules de même masse), celle-ci est loin d'être réalisée. Cette théorie est en tout cas sûrement plus réaliste que le modèle de BRINKMAN [60] qui néglige l'effet de la charge de la particule et qui, en estimant à 45% la part de l'énergie transférée au réseau par collisions, la surestime très certainement.

IV. 1.2 - Cascade de déplacements.

SEITZ est à l'origine de la notion de "cascade de déplacements". Lorsque le libre parcours moyen d'un atome primaire devient très faible (de l'ordre d'une distance interatomique) il se produit une "gerbe" d'atomes déplacés dans un volume assez réduit. GENTHON [61] a calculé que des primaires d'énergie allant jusqu'à plusieurs MeV - c'est-à-dire la presque totalité de ceux-ci - avaient une très forte probabilité de créer une telle cascade.

La géométrie de ces cascades ainsi que la répartition spatiale des

défauts qui y sont contenus a aussi été étudiée.

Une zone de déplacement peut être grossièrement assimilée à une sphère dont le diamètre décroît lorsque le numéro atomique du matériau augmente. En effet, les sections efficaces de choc augmentent avec Z et les cascades seront plus ramassées dans un métal lourd.

On a été en effet amené à admettre l'existence à l'intérieur de la cascade d'une zone riche en lacunes [62] entourée d'une couronne d'interstitiels. Une représentation visuelle de la répartition spatiale a pu être obtenue grâce à des calculs de simulation à la machine, notamment ceux de BEELER dans le tungstène [63] et plus récemment de TORRENS [64] dans le cuivre. La figure 29 montre une image typique des configurations obtenues. Les concentrations en défauts ponctuels y sont de l'ordre de 10^{-2} atomique.

IV.2 - PARTICULES D'IRRADIATION ET DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX.

IV.2.1 - Particules.

Nous avons irradié nos échantillons avec 3 types de projectiles : les neutrons rapides, les particules de fission de l'uranium 235 et des ions de gaz lourd.

IV.2.1.1 - Neutrons.

Les neutrons rapides (> 1 MeV) ont été fournis par le réacteur TRITON (Fontenay-aux-Roses). Nous disposons dans cette pile d'un flux de neutrons rapides pouvant aller jusqu'à $4 \cdot 10^{13}$ n/cm²/s. La fluence appliquée à l'échantillon est contrôlée par comptage de moniteurs en nickel soumis à la même irradiation. On peut estimer, dans ces conditions, à $\pm 20\%$ la précision relative sur la fluence.

Le spectre des neutrons émis est tel que, simultanément, on irradie en plus avec un flux de neutrons thermiques 10 fois supérieur à celui des rapides. D'autre part, le spectre des neutrons rapides présente un pic aigu aux environs de 1,2 MeV, la décroissance étant ensuite exponentielle vers les hautes énergies ; à 10 MeV il n'y a presque plus de neutrons.

La température de l'échantillon est à peu près celle de l'eau de la piscine du réacteur, à l'échauffement γ près, soit environ 35°C.

IV.2.1.2 - Particules de fission.

IV.2.1.2.1 - Rendement en particules de fission.

Tous les éléments et toutes les énergies ne sont pas également représentés dans le spectre des particules émises par la fission de l'uranium 235. Le rendement en masses des particules est illustré par la figure 30 . On voit nettement que les fragments sont centrés sur deux grandes familles dites des "fragments légers" et des "fragments lourds". La première est centrée sur les ions Kr d'énergie 70 MeV, la deuxième d'ions Xe d'énergie 100 MeV.

IV.2.1.2.2 - Sources.

Les sources d'uranium enrichi en ^{235}U sont de deux types :

- sources minces : il s'agit d'un dépôt d'uranium obtenu par évaporation sur un support en aluminium. L'épaisseur de la couche active varie de 200 à 1 000 Å . Elle a été contrôlée soit par pesée d'une grande surface de source avant et après évaporation, dans les toutes premières irradiations, soit ensuite par comptage des traces laissées par la source dans un mica irradié à son contact, dans le réacteur ZOE, sous une faible fluence ($\approx 10^{10}$ n/cm²). Ces traces sont révélées par attaque du mica une heure dans l'acide fluorhydrique. La densité de traces est donnée par :

$$D_T = (E \cdot \mathcal{N} \cdot \sigma_n \cdot \Psi_z \cdot t) \times e$$

où E est la teneur en uranium 235, $\mathcal{N}$ le nombre d'atomes par cm³ dans l'uranium, σ_n la section efficace de fission de l'uranium par les neutrons, Ψ_z le flux instantané dans ZOE, t le temps et e l'épaisseur cherchée.

D_T est déterminé par comptage au microscope optique. Cette méthode est plus précise que la pesée car Ψ_z est très bien connu. L'erreur sur σ_n s'élimine quand on calcule le nombre de particules de fission provenant de la source.

On peut évaluer à $\pm 20\%$ l'erreur relative sur la fluence par cette méthode et à $\pm 40\%$ par pesée. Cette dernière valeur est élevée du fait que l'on doit peser des masses d'environ 0,5 mg.

Ces sources minces se caractérisent par le fait qu'il n'y a pratiquement pas d'autoabsorption des particules de fission à l'intérieur de la source : elles permettent des irradiations à pleine énergie.

- sources épaisses : ce sont des pastilles d'uranium naturel d'épaisseur supérieure à 3μ . Au delà de cette profondeur les particules émises ne sortent pas de la source et il est inutile qu'elles soient notablement plus épaisses. Ces sources du fait de l'autoabsorption émettent des fragments qui n'ont plus le spectre caractéristique des particules de fission.

Les énergies et les masses des fragments sont moyennées depuis les valeurs maximales jusqu'à zéro.

IV.2.1.2.3 - Contrôle du flux thermique.

Il est assuré par des moniteurs d'aluminium-cobalt à 2%. On compte l'émission γ (cf. IV.2.2).

IV.2.1.3 - Ions accélérés.

Nous avons utilisé l'accélérateur de Fontenay-aux-Roses pour irradier certains de nos échantillons. Il permet d'obtenir des ions monocinétiques de gaz rares (relativement lourds : argon, krypton, xénon) chargés plusieurs fois. On a irradié sur lames minces obtenues par polissage au double jet. Les irradiations peuvent être conduites jusqu'à une température de 600°C et sous un vide poussé. Les ions peuvent être accélérés jusqu'à 600 keV. Le diamètre du faisceau est de 8 mm et l'intensité peut atteindre plusieurs microampères, ce qui représente des flux instantanés très importants ($\approx 10^{14}$ ions/cm²/s).

Cette technique présente l'avantage sur les fragments de fission d'avoir des particules toutes identiques d'énergie bien définie.

IV.2.2 - Dispositifs d'irradiation.

IV.2.2.1 - Irradiation aux neutrons.

Les échantillons sont massifs. Ils sont simplement introduits dans un conteneur en forme de tube à couvercle serti. Le conteneur ainsi étanche est lesté avec du plomb nucléaire et introduit au coeur du réacteur.

IV.2.2.2 - Irradiation aux particules de fission.

Le schéma de la figure 31 expose le principe du dispositif adopté. La source est maintenue parallèlement à l'échantillon à une distance variant

suivant la fluence et le temps d'irradiation recherchés. Dans certaines expériences, on a été conduit à interposer des "absorbeurs" d'aluminium (10 microns) ou d'or battu¹⁾ pour freiner les particules arrivant sur l'échantillon. On a vu en effet que l'efficacité était plus grande en fin de parcours de la particule.

Nous avons utilisé les deux dispositifs d'irradiation en "tubes" et en "barillets" représentés sur la figure 32. La distance typique échantillon-source est de 15 mm. Ceci introduit un facteur géométrique f dans le calcul du flux de fragments arrivant sur la lame mince ou l'échantillon, compte tenu de l'angle solide utile. On a :

$$f = 1 - \cos \alpha \approx \frac{\alpha^2}{2} \quad \text{avec} \quad \alpha \approx \frac{1}{10}.$$

Cette disposition oblige à irradier pendant un temps 200 fois plus long, mais présente l'avantage de donner un flux de particules quasi-parallèle.

Nous avons également opéré des irradiations au contact, soit en appliquant directement la source sur l'échantillon, soit même en évaporant directement l'uranium sur le tungstène (c'est le cas pour presque toutes les irradiations sur échantillons massifs). Le flux est alors isotrope et ceci peut être intéressant lorsque l'on recherche à moyenniser les effets dans toutes les directions et à échapper aux phénomènes parasites de canalisation.

Quel que soit le dispositif utilisé il est introduit dans un conteneur en acier à couvercle muni d'un queusot permettant de faire le vide. L'étanchéité est assurée par un joint d'indium.

IV. 3 - TECHNIQUES D'OBSERVATION.

IV. 3.1 - Comptage des boucles.

Ce qui est contenu dans ce paragraphe s'applique aussi aux observations relatives aux boucles de trempe (chapitre III).

Tous les résultats qui suivent reposent surtout sur des mesures statistiques de densités de boucles. Il a semblé utile de préciser comment

¹⁾ On trouvera tous les détails concernant la préparation des pastilles d'absorbeurs dans la thèse de J. MASOUNAVE [65].

nous avons opéré. Le calcul de cette densité demande deux mesures : d'une part le comptage du nombre de boucles dans une plage de dimensions standard, dont l'épaisseur est supposée constante, d'autre part la détermination de cette épaisseur.

IV.3.1.1 - Numération des amas.

Le premier problème est de savoir ce que l'opérateur doit compter. En effet pour les tout petits amas ($\leq 40 \text{ \AA}$), on peut facilement les confondre avec des petits précipités ou avec des impuretés situées à la surface de la lame. En fait, on est aidé par le fait que dans des conditions de diffraction déterminées (faible écart aux conditions de Bragg) ces "dots" exhibent un contraste caractéristique dit "contraste noir-blanc" constitué par la juxtaposition d'une tache brillante et d'une tache noire. Nous verrons que ce type de contraste peut d'ailleurs être utilement exploité pour la détermination du vecteur de Burgers et de la nature de la boucle.

Néanmoins l'ambiguïté subsiste pour de nombreux "points noirs". Ceci conduit à faire un comptage par excès où "tout" est compté et un comptage par défaut où seuls les "dots" indiscutables sont pris en considération. La valeur adoptée est une valeur pondérée entre ces deux chiffres extrêmes ; l'écart maximal entre les deux étant de 50 %, l'erreur relative due à l'ambiguïté est de $\pm 25\%$.

Pour les boucles bien résolues - c'est le cas des trempes ou des irradiations à forte fluence - ce problème ne se pose évidemment pas.

IV.3.1.1.1 - Erreur statistique.

Compter des boucles ou des "dots" est un travail fastidieux et long. Si donc on a intérêt à en compter le maximum pour minimiser l'erreur, nous avons pris pour règle de limiter les comptages à 2 500 unités correspondant en général à une collection d'une dizaine de zones de 250 défauts d'irradiation chacune. Dans ces conditions, on peut estimer à 10 % la précision statistique de ces comptages.

IV.3.1.1.2 - Corrections nécessitées par le comptage.

On sait que le contraste s'affaiblit beaucoup lorsque $\vec{g} \cdot \vec{b}$ est voisin de zéro, exceptés certains cas particuliers déjà mentionnés. Ceci est vrai

que l'on ait affaire à des boucles résolues ou à des petits amas présentant un contraste noir-blanc. Ceci signifie que l'on omet systématiquement de compter tous les défauts dont le vecteur est dans un plan normal à $\vec{g}$.

Il faut donc corriger le nombre N_m d'amas mesurés d'un facteur de contraste F_c ; N_r nombre réel d'amas comptés sera :

$$N_r = \frac{N_m}{F_c} \quad \text{avec} \quad F_c = \frac{\text{nombre de boucles à } \vec{g} \cdot \vec{b} \neq 0}{\text{nombre total de boucles}}$$

L'évaluation de F_c est à faire pour chaque vecteur de diffraction et chaque type de boucles. Le tableau qui suit donne quelques valeurs du produit $\vec{g} \cdot \vec{b}$ pour les différents vecteurs de Burgers de la famille $\frac{1}{2} \langle 111 \rangle$, dans quelques cas courants.

Vecteur de diffraction $\vec{g}$	Plan (110)			Plan (120)	Plan (310)
Vecteur de Burgers $\vec{b}$	[002]	[1 $\bar{1}$ 0]	[2 $\bar{2}$ 2]	[21 $\bar{1}$]	[$\bar{1}$ 32]
$\frac{1}{2}$ [111]	1	0	1	0	2
$\frac{1}{2}$ [$\bar{1}$ 11]	1	2	$\bar{1}$	$\bar{2}$	3
$\frac{1}{2}$ [1 $\bar{1}$ 1]	1	2	3	1	$\bar{1}$
$\frac{1}{2}$ [11 $\bar{1}$]	$\bar{1}$	0	$\bar{1}$	1	0
F_c	1	0,5	1	0,75	0,75

N.B. - Ceci suppose que les 4 familles sont équiréparties. Dans l'hypothèse où ce n'est pas le cas (cf. chapitre V) il faut choisir des vecteurs de diffraction tels qu'aucune extinction ne se produise.

En résumé la précision finale sur le comptage des boucles par unité de surface observée est de l'ordre de 35%, compte tenu de ce qui précède.

IV.3.1.2 - Epaisseur des lames.

C'est une cause importante de l'imprécision sur la densité. En effet les lames sont souvent d'épaisseur inhomogène sur une même zone. Comme

il est difficile de mesurer l'épaisseur en de nombreux points, il faut souvent se contenter d'une valeur moyenne.

Nous avons utilisé pour cette mesure la méthode préconisée par HIRSCH [66] : le comptage des franges d'épaisseur en fond noir à l'intérieur d'un contour d'extinction. Dans ces conditions, en effet, on sait qu'il suffit de multiplier le nombre de franges observées par la distance d'extinction ξ_g pour avoir une mesure raisonnable de l'épaisseur de la lame. La figure 33 illustre cette méthode.

Compte tenu des effets d'absorption, nous estimons à 30% la précision de cette méthode. Il ne nous a pas été possible d'utiliser des méthodes cristallographiques telles que mesure de la largeur d'un joint de macles ou de la trace de glissement d'une dislocation ; en effet d'une part, les macles sont inexistantes dans le tungstène (cf. chapitre II), d'autre part les dislocations glissent très difficilement sous le faisceau, même si on laisse la lame se contaminer dans le microscope.

IV.3.1.3 - Erreur relative sur les densités de boucles.

Soit e l'épaisseur mesurée, N_c le nombre de boucles compté, toutes corrections faites. La densité N sera : $N = \frac{N_c}{e}$.

$$\text{Donc : } \frac{\Delta N}{N} = \frac{\Delta N_c}{N_c} + \frac{\Delta e}{e} = \frac{35}{100} + \frac{30}{100} = 65\% .$$

Cette précision peut sembler faible, mais les nombres N varient selon l'irradiation dans un large domaine, ce qui justifie l'emploi de coordonnées logarithmiques et l'erreur totale est acceptable.

Une erreur supplémentaire sur N_c peut s'ajouter pour les très fortes densités. En effet, au delà de 10^{16} amas/cm³, il se produit de fréquentes superpositions en projection des défauts contenus dans la lame. Il en résulte que ce qui est compté pour une unité peut correspondre dans l'espace à deux ou plusieurs amas. On a tendance à minimiser N . En conséquence les valeurs de N correspondant aux fortes fluences ont été multipliées par un facteur de correction dont le calcul est détaillé dans l'annexe n° I.

IV.3.2 - Vecteur de Burgers et nature des boucles.

Ces problèmes ne se posent pas de la même manière suivant que

l'on a affaire à de petites boucles ou "dots" (diamètre inférieur à $40 \text{ \AA}$) ou à de grosses boucles.

IV.3.2.1 - "Dots".

Ces défauts, nous l'avons dit, se caractérisent par leur contraste noir-blanc près des conditions de Bragg, ou par un petit point noir si s , écart à l'interférence, est grand.

La théorie du contraste noir-blanc (CNB) a été développée par RUHLE et al. [67] à Stuttgart ; grâce à des calculs à l'ordinateur fondés sur les champs de contrainte exercés sur les plans réflecteurs, on peut déduire de l'étude des CNB non seulement la nature du défaut qui provoque le contraste, mais encore, s'il s'agit d'une petite boucle de dislocation, le vecteur de Burgers et même la nature lacunaire ou interstitielle de cette boucle.

Nous avons utilisé cette méthode de façon systématique en ce qui concerne la détermination du vecteur de Burgers. Résumons-en les points essentiels.

a) Tout "défaut" de symétrie quasi-sphérique présente une direction de CNB (ligne joignant le centre des deux petites taches) parallèle au vecteur $\vec{g}$, quel que soit celui-ci.

b) Au contraire, si c'est une boucle qui est responsable du CNB, la direction de celui-ci sera toujours parallèle à la projection de son vecteur de Burgers sur le plan de la lame.

Il suffit donc de changer de vecteur de diffraction. Si la direction du CNB est constante, on a bien affaire à une boucle dont on peut en général déterminer le vecteur de Burgers.

La connaissance de la nature lacunaire ou interstitielle de la boucle impose de connaître la profondeur de celle-ci au sein de la lame. En effet, cette détermination se fait en considérant le sens (et non plus seulement la direction) du CNB ; or RUHLE a montré que ce sens changeait pour une même boucle tous les $\xi_{g/2}$ au fur et à mesure qu'on se déplaçait verticalement dans la lame (cf. figure 34).

A condition de savoir dans quelle "tranche" de lame la boucle se trouve, le sens du CNB renseigne sur sa nature. Nous ne faisons que mentionner cette méthode car elle conduit à réaliser des observations par une technique stéréo-

graphique qu'il ne nous a pas été possible de mener à bien pour ce travail.

Nous verrons d'ailleurs au paragraphe IV. 5. 2 que nous avons tenté de justifier par un modèle simple l'hypothèse de la nature lacunaire des boucles que nous observons dans nos irradiations de lames minces pour pallier ce manque expérimental.

IV. 3. 2. 2 - Grosses boucles.

Pour les grosses boucles, nous avons eu recours (cf. chapitre III) au procédé classique d'extinction du contraste pour déterminer le vecteur de Burgers. Il est nécessaire de procéder à plusieurs clichés (plusieurs vecteurs de diffraction) afin de confirmer un premier résultat. L'utilisation du porte-objet goniométrique a permis également de préciser le plan des boucles observées dans de nombreux cas.

Sur les grosses boucles, on peut faire des mesures de diamètre en prenant les précautions d'usage, les effets de contraste pouvant faire varier considérablement le diamètre apparent d'une telle boucle.

IV. 4 - RESULTATS.

Nous distinguerons les irradiations sur échantillons massifs des irradiations sur lames minces dont les résultats sont très différents, respectant ainsi la chronologie des expériences.

IV. 4. 1 - Irradiations de tungstène massif.

Nous entendons par "massif" des échantillons d'épaisseur :

- a) 100 microns qualité A pour les irradiations aux neutrons,
- b) 10 microns qualité B ou échantillons type A préalablement amincis à 10 microns pour les irradiations aux fragments de fission. Ceci correspond au double du parcours de ces particules dans le tungstène. La lame mince qui se fait d'elle-même au centre de l'échantillon se trouve être ainsi la zone contenant le maximum de défauts.

IV. 4. 1. 1 - Effet des neutrons rapides.

IV. 4. 1. 1. 1 - Fluence-seuil d'apparition des défauts.

Nous avons réalisé une première série d'irradiations sur échantillons bruts de laminage (BL) et sur des échantillons recuits à 1 200°C pendant une heure sous bon vide (R 12), aux fluences Φ et sous les flux instantanés Ψ qui suivent :

Φ n/cm ²	2,7 x 10 ¹⁸	3,7.10 ¹⁸ 10 ¹⁹
Ψ n/cm ² /s.	4 x 10 ¹¹	2.10 ¹²

Les lames observées après ces 3 irradiations ne présentaient aucun dégât.

Nous avons alors irradié le même type d'échantillons à une fluence de 10²⁰ n/cm²/s. sous un flux instantané de 10¹³ n/cm²/s. environ afin de dépasser le seuil d'apparition des dégâts. Les observations peuvent se résumer ainsi :

- 1) Echantillon (BL) : la figure 35 montre l'absence de "dots". La microstructure du métal est absolument inchangée.
- 2) Echantillon (R 12) : contrairement au cas précédent, on voit apparaître de nombreux amas, à l'état brut d'irradiation. Leur densité avoisine 2.10¹⁶/cm³. La figure 36 est représentative d'un tel échantillon. On constate sur cette figure une accumulation de ces amas au voisinage d'une dislocation.

On peut donc conclure que pour un métal possédant une structure cellulaire (cf. chapitre II) le seuil d'apparition de défauts se situe pour une fluence de quelques 10¹⁹ n/cm². Ceci confirme les observations comparables de LACEFIELD [68]. Cette fluence est remarquablement élevée comparée à ce qu'elle est dans des métaux tels que le cuivre.

IV.4.1.1.2 - Recuits post-irradiation.

Sur un échantillon (BL), il faut effectuer un recuit de deux heures à 1 200°C pour commencer à voir des "dots" au microscope, comme l'illustre la figure 37. Leur taille est très petite (≈ 30 Å).

Si par contre, on opère un traitement à 600°C pendant deux heures sur R 12, on note les points suivants :

- a) la répartition des amas n'est plus homogène. A côté de zones pratiquement vierges de défauts, on retrouve une densité d'amas comparable

à la valeur avant recuit au voisinage des dislocations (figure 38). Tout se passe comme si celles-ci avaient "balayé" une partie des défauts avant d'être bloquées par ceux qui subsistaient. Un exemple d'ancrage de dislocation par les amas est montré sur la figure 39 .

b) la taille moyenne des dots n'a pas beaucoup évolué ($\approx 100 \text{ \AA}$). On rencontre cependant quelques amas plus gros qu'avant le traitement thermique. Aucun défaut par contre n'est résolu sous forme de boucle de dislocation.

IV.4.1.2 - Effet des particules de fission.

Des irradiations aux particules de fission ont été conduites sur des échantillons massifs écrouis ou recuits à haute température aux fluences suivantes : $1,5 \cdot 10^{10}$, $4 \cdot 10^{11}$ et $3 \cdot 10^{13}$ f.f./cm². Celles-ci sont respectivement illustrées par les figures 40 - 41 et 42 .

IV.4.1.2.1 - Aspect micrographique.

On est en présence de "dots" pour les 3 fluences indiquées. L'aspect du tungstène irradié dans ces conditions appelle les remarques suivantes :

a) un échantillon préalablement écroui révèle une densité de défauts assez élevée, même aux faibles fluences. Par contre, à fluences égales, un échantillon recuit avant irradiation ($\theta > 2\,000^\circ\text{C}$) contient des boucles de plus grand diamètre, soit en moyenne $200 \text{ \AA}$. Leur densité est légèrement plus faible (- 50%).

b) par chauffage de la lame mince sous le faisceau d'électrons, on constate une évolution notable des défauts ; les défauts sont brusquement balayés, ne laissant subsister que quelques grosses boucles.

c) après un recuit à $1\,300^\circ\text{C}$ effectué sur l'échantillon massif, les amas ont complètement disparu. Le métal ne garde plus aucun souvenir de l'irradiation.

On notera en outre l'absence de zones appauvries le long des puits de défauts ponctuels, les joints de grains.

IV.4.1.2.2 - Variation de N avec la fluence.

Nous avons reporté sur la figure 43 le nombre d'amas par cm³ en

fonction de la fluence Φ correspondant aux trois irradiations indiquées ci-dessus.

On constate que la densité de défauts semble avoir atteint une valeur de saturation au delà de 10^{13} f.f./cm³. D'autre part, même à faible fluence, le nombre d'amas reste élevé. Ce point est important : nous le verrons, c'est là que réside la différence essentielle de comportement entre échantillons massifs et lames minces.

La taille des défauts varie aussi notablement avec la fluence : à l'état de "dots" souvent microscopiques ($\simeq 40$ Å de diamètre) dans du tungstène irradié à 10^{10} f.f./cm², ceux-ci forment des boucles dépassant souvent 400 Å à fluence maximale.

Il faut signaler enfin la présence relativement fréquente de "dots" très groupés contrairement à ce qu'on observe dans les irradiations par les neutrons ; ceci peut s'interpréter par le fait que les particules de fission créent des cascades de déplacements beaucoup plus énergiques que les neutrons rapides. Ces "groupements de défauts" peuvent être l'image de cascades multiples telles qu'elles apparaissent dans les calculs de simulations de TORRENS auxquels nous avons déjà fait allusion. Il est à noter par ailleurs que MERKLE [69] signale des observations du même genre dans le cuivre irradié en lames minces par des fragments de fission à une fluence de $2,5 \cdot 10^{11}$ f.f./cm².

IV.4.2 - Echantillons minces.

Les irradiations sur lames minces ont été réalisées exclusivement avec des fragments de fission

Ceci tient à ce que ces particules sont un outil bien plus puissant que les neutrons pour créer des "dégâts" dans un métal : les temps de séjour dans le réacteur et, partant, l'activité en sont réduits d'autant.

Le but des irradiations sur lames minces est de tester le comportement des défauts créés en présence du puits très efficace que constituent les surfaces toutes proches de la lame. D'autre part, sur le plan expérimental ceci permet d'observer le même échantillon avant et après irradiation sans avoir à le manipuler.

Malheureusement, ces irradiations "directes" se traduisent le plus souvent par une forte contamination superficielle de l'échantillon dû au crac-

king des molécules sur le passage du faisceau de particules. Aussi, malgré de nombreuses expériences, nous ne rendons compte ici que de celles qui ont pu être convenablement exploitées.

IV.4.2.1 - Courbe N (Φ).

La courbe qui rend compte de la variation de N avec la fluence Φ est reportée sur la figure 43b en coordonnées logarithmiques. Les 5 expériences auxquelles elles correspondent ont été effectuées avec interposition d'un absorbeur d'aluminium de 10 microns (ou une épaisseur d'or équivalente du point de vue de l'absorption). Ceci avait pour but d'écrêter l'énergie des fragments incidents aux environs de 10 MeV afin d'augmenter l'efficacité des particules.²⁾ Dans ces conditions la comparaison des effets d'une même irradiation sur tungstène massif et sur lames minces, a un sens.

Les résultats sont regroupés dans le tableau suivant :

$N_{(cm^3)^{-1}}$	$3,3 \cdot 10^{13}$	$7,9 \cdot 10^{13}$	$9,1 \cdot 10^{15}$	$9,5 \cdot 10^{15}$	$1,5 \cdot 10^{16}$
f.f./cm ³	$1,1 \cdot 10^4$	$1,0 \cdot 10^{12}$	$2,8 \cdot 10^{12}$	$6,3 \cdot 10^{12}$	$1,5 \cdot 10^{14}$

L'allure de la courbe N (Φ) diffère notablement de la courbe homologue relative au tungstène massif. En effet, si la valeur de N à saturation (fluences élevées) est du même ordre dans les deux cas, la forme initiale des courbes est fondamentalement différente. Elle présente ici un départ parabolique. Nous y reviendrons.

IV.4.2.2 - Analyse du contraste des amas.

Comme nous l'avons expliqué précédemment nous nous sommes intéressés à la nature des petits amas beaucoup plus fréquents que les boucles résolues. Ces dernières se forment surtout après recuit.

Il s'agit d'abord de déterminer si les "dots" sont des amas tridimensionnels ou de petites boucles de dislocations. En effet, même au grandis-

²⁾ D'après FULMER [70], 10 microns d'aluminium ralentissent le fragment moyen léger à 20 MeV et le fragment moyen lourd à 8 MeV.

sement le plus élevé du microscope ($\times 160\,000$), nous ne pouvons donner de réponse d'après le seul aspect de ces défauts. Nous avons donc eu recours à l'analyse des contrastes noir-blanc tels que nous les avons définis au début du chapitre.

Les observations que nous avons pu faire ont permis d'aboutir aux conclusions suivantes :

1) Les directions de CNB sont invariantes avec $\vec{g}$.

2) Ces directions sont parallèles aux directions des projections des différentes directions de la famille $\langle 111 \rangle$ quel que soit le plan de la lame. Ceci nous permet d'affirmer que les "dots" sont bien de petites boucles de dislocations dans leur grande majorité et que ces boucles sont parfaites avec un vecteur de Burgers de type $\frac{1}{2} \langle 111 \rangle$.

La figure 44 illustre un cas typique ; elle représente une micrographie de tungstène irradié à un flux de $6,3 \cdot 10^{12}$ f.f./cm² - le plan de la lame est ici (001) - Les deux directions de contraste rencontrées sont indiquées. Elles sont perpendiculaires entre elles et forment un angle de $\pm 45^\circ$ par rapport au vecteur de diffraction qui est $[200]$ dans le cas présent. Les deux directions de CNB respectivement $[110]$ et $[1\bar{1}0]$ sont bien les projections respectives des vecteurs $[111]$ et $[1\bar{1}\bar{1}]$ d'une part, et de $[1\bar{1}1]$ et $[1\bar{1}\bar{1}]$ de l'autre, sur le plan (100).

IV.4.3 - Autre irradiation.

Nous présentons ici les résultats d'une irradiation de tungstène massif par les neutrons rapides effectuée à haute température ($\approx 900^\circ\text{C}$). La fluence atteint $4 \cdot 10^{20}$ n/cm².

On constate d'une part que les interstitiels sont condensés en boucles de très fort diamètre, environ 2 000 Å en moyenne. Une illustration en est donnée sur la micrographie (a) de la figure 44 bis.

Les lacunes pour leur part se condensent en cavités d'une centaine d'angstroëms de diamètre (micrographie (b)). Ce résultat est d'ailleurs prévisible du fait de l'action conjuguée du fort flux instantané ($2 \cdot 10^{14}$ n/cm²/s.) et de la température d'irradiation. La répartition de ces cavités est très homogène et leur densité peut être évaluée à $5 \cdot 10^{14}$ /cm³, ce qui correspond à un gonflement calculé $\frac{\Delta V}{V}$ égal à $2 \cdot 10^{-3}$.

IV. 5 - DISCUSSION DES RESULTATS.

IV. 5. 1 - Travaux existants sur le tungstène et le molybdène irradiés.

En ce qui concerne les irradiations aux neutrons, les premiers résultats furent publiés en 1966 par LACEFIELD, MOTEFF et SMITH déjà cités, en même temps que les nôtres [71]. Les observations se recoupent correctement tant du point de vue de la fluence-seuil d'apparition des dommages particulièrement élevée que par l'aspect micrographique des lames minces.

Plus récemment RAU [72] a complété ces informations en assignant aux boucles observées un vecteur de Burgers $\frac{1}{2} \langle 111 \rangle$ et une nature lacunaire. Le plan des boucles est (111).

Par contre, MEAKIN et GREENFIELD en irradiant du molybdène aux neutrons trouve des boucles interstitielles purement coin [73]. Ceci est d'ailleurs confirmé par des expériences d'irradiations aux fragments de fission sur échantillons massifs dues à HIGGINS, dans le même métal [74].

Pour ajouter à la confusion concernant la nature des boucles d'irradiation observées, un article récent de BUSWELL [75], qui a pour objet l'étude combinée par microscopie électronique et émission de champ de tungstène irradié par des ions Hg^+ et W^+ de 100 keV, conclut à la présence de boucles lacunaires parfaites et imparfaites de vecteur $\frac{1}{3} \langle 112 \rangle$.

GALLIGAN pour sa part appuie cette conclusion grâce à des expériences de microscopie à émission de champ [76] mais indique pour les boucles un plan habituel de type (110). Cependant dans un récent commentaire [77], SMITH met en doute cette détermination fondée, selon lui, sur une interprétation abusive du contraste.

Il n'existe pas dans la littérature d'expériences d'irradiations de lames minces portant sur des métaux cubiques centrés ; les seules expériences de ce type concernent des métaux tels que le platine [78], l'or [79] ou le cuivre [69]. Dans cette dernière référence, MERKLE s'est surtout attaché à différencier l'effet de la famille des fragments lourds de celui des légers.

IV. 5. 2 - Discussion.

Il ressort de la revue qui précède deux points essentiels :

a) la fluence-seuil d'apparition des "dots" est plus élevée que dans

d'autres métaux. Nos propres expériences corroborent ce point important. Les conditions de germination des amas d'irradiation à température ambiante (ou de cavités à haute température), sont plus difficiles à réaliser au sein d'une cascade de déplacements dans le tungstène que dans un métal normal. Ceci est développé dans le paragraphe (IV. 5.2.1).

b) si les auteurs s'accordent généralement à attribuer aux boucles d'irradiation observées un vecteur $\frac{a}{2} \langle 111 \rangle$ - ce que nous confirmons - la nature de ces boucles n'est pas bien élucidée.

Ceci s'explique bien; à notre avis, les conditions expérimentales différentes dans lesquelles les irradiations ont été effectuées (fluence, flux instantané, température, pureté etc...) sont cause de ces apparentes contradictions.

Bien que nous n'ayons pu déterminer expérimentalement la nature des boucles obtenues dans nos propres expériences nous proposons ici un modèle fondé sur la différence de comportement de la courbe $N(\Phi)$ dans le tungstène irradié sous forme massive et sous forme de lames minces.

Ce modèle est présenté dans le paragraphe IV. 5.2.2, il repose sur l'existence de boucles presque exclusivement lacunaires et en très petit nombre dans les lames minces irradiées à faible fluence du fait de l'attraction des interstitiels par les surfaces. Au contraire, dans le tungstène massif irradié à la même fluence les boucles d'interstitiels prédominent.

IV. 5.2.1 - Difficultés de germination d'un amas d'irradiation.

Le fait qu'un amas germe beaucoup plus difficilement dans un métal réfractaire comme le tungstène tient au fait que les défauts ponctuels, à la température de la cascade et pendant les 10^{-11} seconde que dure l'essentiel des recombinaisons et des agrégats de défauts, n'ont pas le temps suffisant pour migrer et provoquer la germination d'amas visibles par microscopie électronique.

Dans des métaux comme l'or par exemple où la température de réseau est beaucoup plus faible et où les lacunes sont mobiles à la température de l'irradiation, cette germination se fait dès que la matière est touchée une fois donc au premier P.A.F. (premier atome frappé) venant perturber une

zone déterminée. Ceci explique le départ linéaire de $N(\Phi)$ observé dans l'or par D. VAN VLIET [79] et confirmé plus tard par J. MASOUNAVE [80].

Dans le tungstène au contraire, il sera nécessaire que la même zone soit touchée deux fois ou même plus pour produire un amas visible. LETEURET [81] a traité les problèmes de volumes de cascades dans l'uranium en introduisant les fonctions $F_n(v)$ qui représentent la fraction de matière touchée n fois par une irradiation de fluence Φ à raison du volume v par fission. Ces fonctions avaient été utilisées par WHAPHAM et SHELDON dans le cas de l'oxyde d'uranium [82].

De la même manière, si nous considérons la surface de lame mince touchée une fois, deux fois ou n fois par une cascade de déplacements on pourra poser :

$$F_n(s) = 1 - \sum_{m=0}^{m=n-1} \frac{(S\psi)^m}{m!} \cdot \exp(-S\psi) \quad (1)$$

où S désigne la surface touchée en projection par une cascade et ψ le flux de fragments /cm².

Faisons maintenant l'hypothèse qu'une fission laisse en moyenne une boucle et une seule dans la lame. Ceci peut se justifier, si l'on considère que la distance entre deux chocs successifs pour le fragment léger ralenti à 20 MeV calculé par GENTHON [83] est de 2 900 Å, en prenant 20 keV comme énergie du P.A.F correspondant. Cette valeur est du même ordre de grandeur que l'épaisseur de la lame.

Moyennant cette hypothèse, on peut essayer d'évaluer S grâce à l'expression (1).

Si on remarque en effet que $N(\psi)$ se calque assez bien sur une courbe du type $F_2(S)$, on peut estimer que pour $\psi = 10^{12}$ f.f./cm², $F_2(S)$ prend une valeur voisine de 0,5.

$$\text{Donc :} \quad 0,5 = 1 - (1 + S\psi) \exp^{-S\psi}$$

Ceci correspond à $S = 2 \cdot 10^{-12}$ cm².

Si donc on assimile la cascade à une sphère, on trouve que celle-ci occupe $2 \cdot 10^4$ Å² ce qui représente un diamètre approximatif de 150 Å. Cette valeur est sûrement peu précise, étant donné les approximations faites ci-dessus, mais on retrouve l'ordre de grandeur de la dimension d'une cascade

de déplacements tel que l'avait estimé LETEURTRE dans son modèle appliqué aux métaux lourds.

IV.5.2.2 - Différences de comportement entre échantillons massifs et minces.

IV.5.2.2.1 - Modèle d'interprétation.

L'autre point essentiel qui ressort des résultats qui précèdent réside, nous l'avons vu, dans le comportement très différent sous irradiation du tungstène massif ou préalablement aminci.

En effet la croissance du nombre d'amas dans une lame mince irradiée est très lente au départ puis s'accélère brutalement au voisinage d'une fluence critique de l'ordre de 10^{12} f.f/cm². Nous pensons que ceci peut s'interpréter en faisant l'hypothèse que les boucles d'irradiation ne peuvent avoir, dans ce cas, qu'une nature lacunaire.

Nous interpréterons ce fait par l'influence prédominante des surfaces sur les interstitiels dans les lames minces. Ces défauts bien plus mobiles que les lacunes sont attirés par les surfaces et sont perdus pour la suite, empêchant ainsi toute germination de boucles d'interstitiels. Les lacunes pratiquement immobiles sont seules responsables des boucles formées, très peu nombreuses. Il faut attendre une concentration très élevée en lacunes due à plusieurs événements au même endroit de la lame pour qu'il y ait condensation presque athermique en boucles. A partir de ce moment, le processus s'accélère et les boucles formées sont un peu plus grosses que dans la tungstène massif, puisque les interstitiels ne sont pas présents assez longtemps pour empêcher la croissance des boucles lacunaires.

Dans un échantillon massif au contraire, il y a simultanément et en nombre analogue, à tout instant, les deux types de défauts ponctuels. Du fait de la mobilité relative des deux espèces, on tend vers une situation où il y aura beaucoup de boucles interstitielles et peu de boucles lacunaires, à peu près autant que sur lames minces. Les recombinaisons lacune-interstitiel sont nombreuses ce qui tend à limiter la croissance des deux types de boucles.

Dans ce modèle, la différence entre les ordonnées des deux courbes $N(\Phi)$ à fluence égale représente les boucles de nature interstitielle qui peuvent être nucléées dans un cas, mais pas dans l'autre, du fait de "l'aspiration" des surfaces.

IV. 5. 2. 2. 2 - Justification du modèle.

Nous n'avons en fait, nous avons vu pourquoi, aucune preuve expérimentale de la nature exclusivement lacunaire des boucles d'irradiation sur lames minces. Ceci étant la pierre de touche du modèle proposé ci-dessus, nous tenterons de justifier cette hypothèse par un calcul simple³⁾. Celui-ci repose sur la comparaison entre le temps qu'il faut pour la germination d'un amas interstitiel visible avec celui qui est nécessaire à l'interstitiel isolé dans la cascade pour gagner l'une des surfaces de la lame. Le calcul détaillé, ainsi que les hypothèses indispensables pour le mener à bien, sont décrits dans l'annexe n° II . Nous aboutissons à l'expression d'une épaisseur critique de lame e_c en dessous de laquelle un amas interstitiel n'a virtuellement aucune chance d'atteindre la taille correspondant au pouvoir séparateur du microscope électronique (soit 20 Å de diamètre).

Pour le tungstène e_c est de l'ordre de 1 500 Å , ce qui prouve que pour les lames utilisées on est en droit de postuler raisonnablement la nature lacunaire des boucles observées dans les irradiations de lames minces.

³⁾ Ce calcul est inspiré du modèle développé par MAKIN relatif à la nucléation et la croissance d'un amas interstitiel [84].

Chapitre V

GERMINATION SOUS CONTRAINTE DE BOUCLES D'IRRADIATION

Le chapitre précédent a présenté des résultats relatifs à des irradiations de matériaux ne subissant d'autre contrainte que les contraintes thermiques qui se développent au sein des cascades de déplacements.

Dans ce chapitre, au contraire, nous nous intéressons à l'effet d'une contrainte uniaxiale appliquée par l'expérimentateur sur les vecteurs de Burgers des boucles d'irradiation formées. Du fait de la modification par la contrainte appliquée de l'énergie nécessaire à la germination d'une boucle de vecteur donné, on est en droit de s'attendre, dans une expérience d'irradiation sous contrainte sur un métal isotrope, aux résultats suivants :

1) Il est possible d'induire une certaine anisotropie dans les populations de boucles à vecteurs de Burgers équivalents $\frac{1}{2} \langle 111 \rangle$. Ceci s'explique par le fait que les énergies qu'il faut fournir pour faire nucléer une boucle normale de N défauts - nous dirons de façon plus brève, les "énergies de germination" - cessent d'être égales pour les différents vecteurs de Burgers équivalents, dès qu'on exerce une contrainte pendant l'irradiation.

Ceci doit se traduire expérimentalement par un empilement de boucles de même vecteur de Burgers. Ce phénomène est tout à fait analogue à la "croissance" des matériaux anisotropes sous irradiation.

2) Un cas particulier du précédent consiste à appliquer une contrainte suffisamment élevée orientée de façon particulière (parallèlement à $\langle 001 \rangle$). On peut alors envisager la germination de boucles que nous avons qualifiées "d'anormales" à vecteur $\langle 100 \rangle$ par opposition aux boucles "normalement" rencontrées de vecteur $\frac{1}{2} \langle 111 \rangle$.

Ce chapitre présente quelques éléments de réflexion sur ces deux thèmes ; nous verrons qu'ils débouchent également sur le problème des

mécanismes de germination des boucles.

Ce problème est en effet mal connu, certes il a été abordé théoriquement notamment en ce qui concerne la stabilité de l'amas lacunaire en fonction du nombre de défauts qu'il contient. BULLOUGH [85] par exemple, en comparant les énergies respectives des deux configurations amas ou boucle de dislocation aboutit à un nombre de défauts critique d'une vingtaine de lacunes dans le fer.

On peut citer encore l'étude de SIGLER et KUHLMANN-WILSDORF [86] ou celle de JOHNSON [87] qui conclut, dans le nickel, à l'effondrement d'un disque lacunaire situé dans un plan $\{111\}$ en une boucle parfaite à partir de 180 lacunes.

Ce type de calcul pêche, dans le cas du tungstène, par le fait qu'il est difficilement pensable qu'une cavité prenne une forme de disque plutôt qu'une forme pseudo-sphérique dans un métal parfaitement isotrope. Il paraît donc certain que la germination des boucles doit se produire au moment où la cavité est très petite et ne contient que quelques lacunes.

En dehors de ces approches théoriques discutables donc, il n'existe pas de vérification expérimentale de la taille critique d'une boucle en train de germer. Les expériences que nous proposerons ici peuvent peut-être, bien que de façon indirecte, éclairer ce problème d'un jour nouveau.

V.1 - RESULTATS EXPERIMENTAUX CONNUS.

Sur quelles expériences pouvons nous appuyer nos considérations théoriques concernant les deux points qui viennent d'être énoncés ?

V.1.1 - Boucles anormales.

Les boucles anormales existent. Elles ont été observées, à notre connaissance, dans deux expériences d'irradiation à haute température ($\gg 400^\circ\text{C}$).

Tout d'abord MASTERS [88] a irradié du fer α à 550°C avec des ions Fe^{++} . Il observe des boucles de forme carrée purement coin, de vecteur $\langle 100 \rangle$. Les côtés de la boucle sont parallèles aux 2 autres directions

$\langle 100 \rangle$. Dans cette expérience, il n'y a pas de contrainte appliquée et l'apparition de boucles anormales ne peut s'expliquer par notre modèle. En fait, EYRE et BULLOUGH [89] ont expliqué cette expérience par la nucléation de germes possédant un vecteur $\frac{1}{2} \langle 110 \rangle$, donc fautés. Au début du développement de la boucle, il se produirait un cisaillement favorisé par la température élevée qui enlèverait le défaut d'empilement. Ceci conduirait à la production de boucles normales ou anormales suivant la direction de ce cisaillement. C'est pourquoi l'on s'explique mal l'absence totale de boucles normales dans les observations de MASTERS.

Par ailleurs, lors d'une irradiation aux neutrons de l'alliage Fe 50-Ni 50 à 400 °C au C.E.N. -G. à Grenoble, SILVESTRE [90] a également observé des boucles de vecteur $\langle 100 \rangle$. Là encore la température de l'irradiation peut être invoquée pour la germination de telles boucles à moins que par effet de taille, on engendre des contraintes dirigées qui favorisent cette germination par le processus développé ci-dessous.

V. 1. 2.- Fluage sous irradiation à basse température.

Nous faisons ici allusion à des expériences d'irradiation effectuées par PONSOYE [91] à 20 K sur plusieurs métaux cubiques centrés et le tungstène en particulier. L'auteur a mesuré les variations de longueur et de résistivité d'un échantillon irradié par des particules de fission sous une contrainte de tension atteignant 72 kg/mm^2 . Nous nous sommes déjà référés à ce travail, car il fournit la seule valeur connue du volume de formation d'une paire de Frenkel dans le tungstène (cf. chapitre I).

Le résultat essentiel tient dans le fait que la résistivité est pratiquement insensible à la valeur de la contrainte appliquée tandis que la longueur en dépend fortement et ne présente pas de saturation sous forte contrainte. Ceci conduit à penser que c'est le mode de condensation des défauts sous contrainte qui est ici en cause. Plus précisément, ces expériences peuvent assez bien s'interpréter en termes de "croissance induite". D'autres explications peuvent bien sûr être invoquées comme le dépinglage des dislocations dans la cascade ou une diminution du module de Young sous irradiation, mais un modèle du type de celui qui est exposé ici rend mieux compte de ces résultats.

V.2 - PREVISIONS THEORIQUES SUR LA GERMINATION DE BOUCLES SOUS CONTRAINTE UNIAXIALE.

V.2.1 - Effet d'une contrainte sur l'énergie élastique d'une boucle.

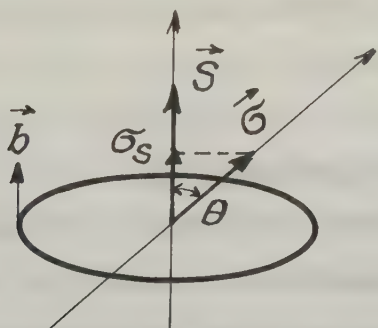
Soit une boucle de lacunes ou d'interstitiels de surface S et de vecteur de Burgers $\vec{b}$. Soit W_i son énergie élastique due à la seule tension de ligne. Nous soumettons cette boucle à un tenseur de contraintes $[\bar{\sigma}]$. W_i sera augmenté d'un terme d'interaction W' avec la contrainte qui peut s'écrire [92] :

$$W' = \int_S \vec{b} [\bar{\sigma}] \cdot d\vec{S}$$

soit pour une contrainte uniaxiale et en supposant la boucle purement coin :

$$W' = (\vec{b} \cdot \vec{S}) \sigma_S = b \cdot S \cdot \sigma \cdot \cos \theta$$

avec les notations de la figure ci-contre .



L'énergie de germination de la boucle s'écrit :

$$W = W_i + W' = W_i + b S \sigma \cos \theta \quad (1)$$

V.2.2 - Germination de boucles "anormales".

Nous avons vu que nos observations dans le tungstène irradié ainsi que celles de la majorité des auteurs nous ont conduit à attribuer un vecteur $\frac{1}{2} \langle 111 \rangle$ aux boucles d'irradiation. On peut aussi envisager des boucles de vecteur $\langle 100 \rangle$ bien qu'elles soient énergétiquement peu probables (cf. chapitre I). Nous allons montrer que sous contrainte, ces boucles peuvent se former préférentiellement aux autres.

V.2.2.1 - Conditions de germination - Contrainte critique.

Considérons une contrainte de compression appliquée dans la direction $[001]$. Dans cette hypothèse, les boucles de vecteur de Burgers normal à $\vec{\sigma}$, c'est-à-dire $[100]$ et $[010]$ ont une énergie de germination invariante en fonction de la contrainte, qu'elles soient lacunaires ou interstitielles.

Par contre, l'énergie des boucles interstitielles normales de vecteurs $\frac{1}{2} \langle 111 \rangle$ augmente de façon linéaire avec la contrainte, en vertu de (1).

Ceci ne fait que traduire la difficulté croissante à faire nucléer une boucle interstitielle, lorsque la matrice est comprimée perpendiculairement à son plan.

La figure 45 montre ces variations d'énergie de boucles. Les boucles normales sont indicées 1 et les boucles anormales indicées 2. On remarquera que les droites représentatives des boucles interstitielles et lacunaires sont symétriques par rapport à l'horizontale d'énergie constante, puisque seul $\vec{b}$ est changé en $-\vec{b}$; en outre le produit $\vec{b} \cdot \vec{S}$ intervenant dans l'expression des pentes, les droites partant de W_{i1} sont plus raides que celles partant de W_{i2} . Le rapport des pentes est de 1 ($\vec{\sigma}$ confondu avec $\vec{b}$) à $\frac{1}{\sqrt{3}}$ ($\theta = 54,74$ degrés).

Ce diagramme fait apparaître qu'au point d'intersection A d'abscisse $\sigma_{cr.I}$, il peut y avoir changement de type de vecteur de Burgers pour les boucles interstitielles à nucléer : pour $\sigma > \sigma_{cr}$ une telle boucle gagne de l'énergie à se nucléer avec un vecteur anormal $[010]$ ou $[100]$.

Il existe de même une contrainte critique $\sigma_{cr.I}$ correspondant au point d'intersection B au delà de laquelle les boucles lacunaires les boucles de lacunes ont intérêt à se condenser avec un vecteur anormal $[001]$.

Les contraintes $\sigma_{cr.I}$ et $\sigma_{cr.L}$ dépendent du nombre N de défauts condensés dans la boucle et nous montrons dans l'annexe III que la valeur de $\sigma_{cr.L}$ reste proportionnelle à $\sigma_{cr.I}$. Donc, la courbe obtenue pour $\sigma_{cr.I}(N)$ sera valable pour $\sigma_{cr.L}$ à une affinité près.

Tout ce qui vient d'être énoncé pour une contrainte de compression se transpose intégralement pour une contrainte de traction; il suffit pour cela d'inverser la nature des boucles, les boucles de lacunes devenant interstitielles et inversement. Cette précaution prise, les conclusions ci-dessus peuvent être reprises mot pour mot. Cependant, dans la pratique, il est plus commode d'imaginer un dispositif expérimental fonctionnant en compression. C'est pourquoi, nous supposons désormais que la contrainte extérieure appliquée exerce une compression.

V.2.2.2. - Calcul de la contrainte critique.

Nous traiterons ici plus spécialement le cas de la contrainte critique se rapportant aux boucles interstitielles (point A de la figure 45).

La contrainte critique $\sigma_{cr.I}$ est atteinte lorsque l'énergie W_1 de la boucle normale atteint la valeur W_2 de l'énergie d'une boucle anormale $[100]$ ou $[010]$ indépendante de la contrainte. Nous aurons donc :

$$W_1 = W_2 = W_{i2}$$

soit :

$$W_{i1} + \sigma_{cr.I} (\vec{b}_1 \cdot \vec{S}_1) = W_{i2}$$

d'où :

$$\sigma_{cr.I} = \frac{W_{i2} - W_{i1}}{b_1 S_1 \cos \theta} = \frac{W_i}{b S \cos \theta} \quad (2)$$

La suite du calcul nécessite donc la connaissance des énergies intrinsèques W_i des boucles (1) et (2). Nous utiliserons à cet effet l'expression qu'a proposé FRANK(1949) pour une boucle de rayon R (dérivée de la formule de BLIN) :

$$W_i = \frac{\mu b^2 R}{2(1-\nu)} \cdot \left[\text{Log} \frac{4R}{\rho} - 1 \right]$$

où ρ représente un rayon de coupure nécessaire pour tenir compte de l'énergie de coeur de la dislocation, et ν le module de Poisson.

$$\rho \text{ est défini par : } \rho = \frac{b}{2\alpha}$$

expression où α est un coefficient qui dépend du matériau, et qui dans un métal comme le tungstène peut être pris égal à 1. W_i devient donc :

$$W_i = \frac{\mu b^2 R}{2(1-\nu)} \cdot \left[\text{Log} \frac{R}{b} + 0,4 + \text{Log} \alpha \right] \quad (3)$$

Cette formule, notons le, n'est qu'approchée du fait de l'incertitude qui pèse sur le coefficient α , l'énergie d'une dislocation restant encore mal connue. En particulier, pour les boucles à très faible rayon ($R < 10 \text{ \AA}$) l'expression (3) ne signifie plus grand chose. Ceci revient à dire que pour de petites boucles l'hypothèse de l'élasticité linéaire est en défaut.

Enfin, l'équation appliquée ci-dessus suppose que l'on a toujours affaire à des boucles-coin. Cette condition est bien vérifiée en l'absence de contrainte appliquée, et nous montrons dans l'annexe IV que tant qu'on se limite à des contraintes raisonnables, la boucle bascule assez peu pour que l'approximation ci-dessus reste réaliste. Tenir compte de cet effet obligerait à rajouter un terme fonction de σ , dans les crochets de la formule (3).

De l'équation (3) nous déduisons ΔW_i :

$$\Delta W_i = \frac{\mu}{2(1-\nu)} \left\{ a^2 R_1 \left(\text{Log } \frac{R_1}{a} + 0,4 + \text{Log } \alpha \right) - b^2 R_2 \left(\text{Log } \frac{R_2}{b} + 0,4 + \text{Log } \alpha \right) \right\}$$

en désignant par a le paramètre du métal, qui est en même temps le module du vecteur de Burgers d'une boucle anormale, et par b le vecteur d'une boucle normale, soit $b = a \sqrt{3} / 2$.

Exprimons les rayons R_1 et R_2 . Si s_e^i est la surface élémentaire occupée par un défaut de la boucle (i), il vient :

$$R_i^2 = \frac{N}{\pi} \cdot s_e^i$$

soit en remplaçant s_e^i par sa valeur :

$$R_i = a \sqrt{\frac{a N}{2 \pi b_i}}$$

A titre indicatif, le tableau qui suit donne quelques valeurs de R_1 et R_2 .

N Nombre défauts	R_1 (boucles normales)	R_2 (boucles anormales)
10	4,3	4,0
20	6,0	5,5
30	7,8	6,9
40	8,5	8,0
50	9,5	8,9

Reportons cette expression des rayons dans ΔW_i ; nous obtenons, tous calculs faits, en posant $\sqrt{N/2\pi} = \lambda$ et $\frac{b_2}{b_1} = \frac{b_i}{a} = \beta = \frac{\sqrt{3}}{2}$

$$\Delta W_i = \frac{\mu a^3 \lambda}{2(1-\nu)} \left\{ (\text{Log } \lambda + 0,4 + \text{Log } \alpha) (1-\beta)^{3/2} + \frac{3}{2} \beta^{3/2} \text{Log } \beta \right\} \quad (4)$$

La figure 46 donne la variation de ΔW_i avec le paramètre N , pour différentes valeurs de α dans le tungstène. Pour les raisons exposées ci-dessus, nous n'avons représenté les courbes en trait plein que pour $N > 20$ défauts, le calcul cessant d'être significatif pour N inférieur. Les portions de courbes en pointillé sont extrapolées jusqu'à l'origine. On notera que la variation de ΔW_i en fonction de N est quasi-linéaire pour N assez grand.

L'équation (2) peut s'écrire :

$$\sigma_{cr.I} = \frac{\Delta W_i}{b N s_e^1 \cos \theta}$$

Compte tenu de l'expression de s_e^1 donnée ci-dessus :

$$\sigma_{cr.I} = \frac{\Delta W_i}{N \frac{a^3}{2} \cos \theta}$$

En remplaçant, ΔW_i par sa valeur et N par $2\pi\lambda^2$, nous obtenons l'équation donnant la contrainte critique pour les boucles interstitielles en fonction du paramètre λ :

$$\sigma_{cr.I} = \frac{\mu}{2\pi(1-\nu)\lambda \cos \theta} \left\{ (\text{Log } \lambda + 0,4 + \text{Log } \alpha)(1-\beta^{3/2}) + \frac{3}{2}\beta^{3/2}\text{Log } \beta \right\} \quad (5)$$

Dans le cas qui nous intéresse $\cos \theta = \frac{1}{\sqrt{3}}$, et on obtient finalement $\sigma_{cr.I}$ fonction de N :

$$\sigma_{cr.I} = \frac{1,01 \mu [0,097 \text{ Log } N - 0,275 + 0,194 \text{ Log } \alpha]}{\sqrt{N}} \quad (5')$$

Notons, que cette formule est indépendante du paramètre cristallin du matériau. La figure 47 représente la variation de $\sigma_{cr.I}$ en fonction de N dans le tungstène pour différentes valeurs de α centrées autour de 1, déjà utilisées pour ΔW_i . Comme pour cette quantité, on s'aperçoit que l'éventail de courbes est très ouvert, et qu'une erreur très faible sur le coefficient α a des répercussions sensibles, sur l'évaluation de la contrainte critique.

Ceci doit mettre en garde contre une interprétation abusive de ces courbes qui sont censées ne donner qu'une idée approximative de l'allure de la fonction recherchée.

V.2.2.3 - Influence de la dissipation d'énergie au sein de la cascade sur la contrainte critique.

On sait (cf. chapitre IV) que dans les métaux lourds comme le tungstène une cascade de déplacements a une taille réduite (100 Å de diamètre environ), et l'énergie dissipée en son sein par l'atome primaire qui est à son origine a pour effet d'élever momentanément la température de façon notable. C'est ainsi que NELSON déduit de mesures d'évaporation une élévation locale de température de 910°C pendant un temps de $3 \cdot 10^{-12}$ seconde

environ, dans l'or $\lceil 93 \rceil$ pour une cascade de $170 \text{ \AA}$ de diamètre supposé.

Ce phénomène s'accompagne obligatoirement de contraintes thermiques localisées dans la cascade. Donc, la boucle, résidu de cette cascade - nous avons vu qu'à une cascade correspondait en gros une boucle - va germer dans un milieu contraint, même en l'absence de toute contrainte extérieure. Il faut donc ajouter au champ de contrainte uniaxial extérieur, le tenseur de contraintes thermiques.

Ce dernier est malaisé à calculer, d'une part car il faut faire des hypothèses sur les conditions aux limites de la cascade (mur rigide ou pseudorigide) et d'autre part parce que les coefficients de dilatation deviennent anisotropes sous contrainte ainsi que l'ont montré QUERE et PONSOYE $\lceil 94 \rceil$ dans un modèle de chaîne linéaire.

Nous avons pu cependant estimer, grâce à un calcul simple de thermoélasticité qu'il serait superflu de détailler ici et en négligeant l'effet d'anisotropie, que les contraintes thermiques ne dépassaient pas au centre de la cascade quelques kgs/mm^2 . Compte tenu des valeurs trouvées pour la contrainte critique (de l'ordre de 100 kgs/mm^2 pour $N = 15$), prendre en considération les effets thermiques dans la cascade ne conduirait qu'à une correction de l'ordre de quelques %.

Nous avons vu que les approximations du calcul de la contrainte critique sont telles que la précision sur σ_{cr} ne dépasse guère 90 %. Nous négligerons donc, par la suite, les contraintes thermiques. Il faut rester cependant conscient du fait qu'elles existent, surtout quand on irradie à faible contrainte (cf. V. 1. 3).

V. 2. 2. 4 - Applications de σ_{cr} à la taille critique de germination; suggestion d'une expérience.

Le modèle très simple qui vient d'être développé indique qu'il existe une contrainte critique expérimentalement accessible au dessus de laquelle on peut faire basculer le vecteur de la boucle qui va se nucléer de $\frac{1}{2} \langle 111 \rangle$ à $\langle 100 \rangle$. Cette contrainte, d'autre part, est une fonction croissante de N .

Il est clair, dans ces conditions, que la courbe $\sigma_{cr}(N)$ sépare le plan en 2 régions : l'une située "en dessous" de celle-ci où les boucles se nucléent avec leur vecteur habituel, l'autre "au dessus", domaine de

germination des boucles anormales.

Ceci suggère une expérience qui doit permettre d'atteindre le nombre N critique de défauts, au moment de la germination. Il faut pour cela irradier à différentes contraintes et noter le vecteur de Burgers des boucles observées.

Sous réserve que les boucles conservent leur vecteur de Burgers initial pendant leur grossissement jusqu'à observation au microscope, il suffit de noter la valeur de la contrainte pour laquelle il y a basculement des proportions relatives de boucles normales et anormales, et on trouve N par application de la relation (5') donnant σ_{cr} .

L'obstacle du pouvoir de résolution du microscope électronique est ainsi levé, car nous avons accès, grâce à une détermination statistique des vecteurs de Burgers sur des boucles déjà adultes, aux mécanismes de la germination de ces boucles.

Il faudra cependant être prudent dans les conclusions que l'on retirera de l'expérience du fait des hypothèses simplificatrices, et des incertitudes pesant sur certains éléments du calcul. Rappelons-en l'essentiel :

a) l'application d'un calcul élastique à des boucles qui sont probablement de très petite taille.

b) même en supposant ce type de calcul justifié, la mauvaise connaissance du coefficient α qui intervient dans le calcul de l'énergie de la boucle.

c) le problème important du retour éventuel d'une boucle anormale à son vecteur de Burgers habituel.

V.2.3 - Anisotropie des populations de boucles normales induites par une contrainte uniaxiale.

Nous nous intéressons dans ce paragraphe à l'action d'une contrainte uniaxiale de direction quelconque. Nous nous proposons d'évaluer les probabilités de germination des quatre types de boucles à vecteurs de Burgers équivalents $\frac{1}{2} \langle 111 \rangle$. Le raisonnement portera sur des boucles d'interstitiels, car on peut leur assigner, à coup sur, un vecteur de Burgers dès les faibles valeurs de N .

V.2.3.1 - Croissance induite par la contrainte.

En l'absence de contrainte, les quatre familles de boucles normales équivalentes ont autant de chances d'être nucléées les unes que les autres.

Dès qu'on applique une contrainte au système, leur énergie $W_i(N)$ se trouve augmentée d'un terme W'_k , k étant un indice entier représentant le vecteur de Burgers d'une boucle particulière ($1 \leq k \leq 4$); l'équirépartition initiale des quatre types de boucles est détruite. Plus W'_k est faible, plus les boucles du vecteur de Burgers $\vec{b}_k$ sont favorisées.

Ce phénomène s'apparente à la croissance des matériaux anisotropes sous irradiation, l'uranium α par exemple [95], dans lesquels la variation de longueur observée s'explique par condensation des boucles d'interstitiels avec un vecteur de Burgers différent de celui des boucles de lacunes.

Afin d'être en droit d'appliquer la statistique de BOLTZMANN aux quatre niveaux d'énergie W_k , il nous faut admettre l'hypothèse que le passage de la configuration amas tridimensionnel à celle de boucle peut se faire de façon quasi réversible. Ceci peut se justifier à condition que le taux de création de défauts ponctuels ne soit pas trop fort, c'est-à-dire que la vitesse d'arrivée d'un défaut nouvellement créé sur un amas déjà existant ne soit pas trop élevée. Ceci impose d'irradier à des flux instantanés de particules moyens et à des températures où la migration des défauts ne soit pas trop rapide.

Cette réserve étant faite, si l'on appelle $P_k^N(\sigma)$ la probabilité pour qu'une boucle normale de N interstitiels se formant sous la contrainte σ adopte le vecteur de Burgers $\vec{b}_k$:

$$P_k^N(\sigma) = \frac{\exp^{-W_k/kT}}{\sum_{j=1}^4 \exp^{-W_j/kT}}$$

ou :

$$P_k^N(\sigma) = \frac{1}{1 + \sum_{j \neq k}^3 \exp^{-[W_j - W_k]/kT}} \quad (6)$$

Le calcul de W_j a été effectué en tenant compte du basculement de la boucle sous l'effet de la contrainte. En effet, si cet effet est faible dans le cas des boucles anormales, on ne peut le négliger dans le cas général

d'autant que l'on recherche une certaine précision sur les probabilités de germination. L'annexe n° IV montre comment on peut trouver la position d'équilibre de la boucle sous contrainte en minimisant son énergie intrinsèque.

Un problème se pose pour la détermination de W_j pour les faibles valeurs de N , qui sont en réalité les plus probables au moment de la germination ($N < 20$). Nous avons vu en effet que l'approximation du calcul du paragraphe V.2.2 ne tient que lorsque l'énergie de coeur est faible devant l'énergie élastique, ce qui n'est plus vrai dans le cas qui nous occupe ici.

Si on applique la relation (3') pour $N = 1$, on trouve une énergie $W(1)$ égale à 2,8 eV. Ceci est notablement trop faible puisqu'une valeur raisonnable de l'énergie de l'autointerstitiel doit se situer vers 5 eV. Nous avons donc décidé d'ajouter à W_j calculé par la relation (5') un terme décroissant linéairement avec N dans le domaine $1 < N < 20$, égal à 2,2 eV pour $N = 1$ et à zéro pour $N = 20$.

Ainsi W_j s'écrit :

$$W_j = \underbrace{W_i}_{\text{énergie intrinsèque}} + A(20 - N) + W' \quad (6)$$

Nous avons appliqué la relation (6), en calculant W_j comme il vient d'être dit, pour des valeurs de N comprises entre 0 et 20 et jusqu'à des contraintes de 150 kg/mm^2 ¹⁾. La température T est mal connue : les valeurs 100 K, 400 K et 1600 K ont été prises pour suivre la variation de $P_N(k)$ en fonction de T .

Les courbes de la figure 48 montrent les probabilités de germination trouvées dans les cas particuliers $N = 3$ et $N = 7$ interstitiels, et pour une contrainte $\vec{\sigma}$ parallèle à $[111]$.

Si l'on affecte aux directions $[111]$, $[\bar{1}11]$, $[1\bar{1}1]$, $[11\bar{1}]$ respectivement les indices $k = 1, 2, 3$ et 4, on remarquera que dans le cas particulier où l'on s'est placé, $P_2^N = P_3^N = P_4^N$ puisque les 3 directions correspondantes font le même angle avec $\vec{\sigma}$. Par contre, P_1^N sera plus

¹⁾ Ces calculs ont été faits sur ordinateur IBM 360 du Centre de Calcul de Fontenay-aux-Roses. L'auteur remercie les personnes du Département de Calcul qui l'ont aidé dans la réalisation de ce programme.

faible que P_2^N puisque le vecteur $\vec{b}_1$ de la boucle est colinéaire avec $\vec{\sigma}$.

Sur la figure 48, on n'a porté que P_1^N , les 3 autres s'en déduisant très simplement par la relation :

$$P_{i \neq 1}^N = 1 - \frac{1}{3} P_1^N.$$

Le résultat important de ces calculs est qu'une contrainte relativement faible conduit à une anisotropie très marquée des populations de boucles. Le tableau ci-dessous donne les résultats attendus pour la germination de 1 000 boucles effectuée sous une contrainte de 20 kg/mm^2 , parallèle à $[111]$, dans différents cas.

Vecteur de Burgers	Nombre de boucles ($\sigma = 20 \text{ kg/mm}^2$)			
	T = 400 K		T = 1600 K	
	N=3	N=7	N=3	N=7
$\vec{b}_1 = \frac{1}{2} [111]$	73	10	184	115
$\vec{b}_2 = \frac{1}{2} [\bar{1}11]$	309	330	272	295
$\vec{b}_3 = \frac{1}{2} [1\bar{1}1]$	309	330	272	295
$\vec{b}_4 = \frac{1}{2} [11\bar{1}]$	309	330	272	295
Total : 1 000				

On voit tout l'intérêt que l'on peut retirer du calcul de ces probabilités de germination. En effet, la relation (6) donnant $P_k^N(\sigma)$ peut être considérée comme une équation à deux inconnues : N nombre de défauts contenus dans le germe et la température T.

La mesure expérimentale des populations relatives de boucles obtenue par microscopie électronique, pour différents grains du cristal - donc pour différentes orientations de $\vec{\sigma}$ par rapport aux vecteurs de Burgers -, et bien sûr pour plusieurs valeurs de la contrainte, doit permettre d'ajuster au mieux les paramètres N et T avec les probabilités calculées P_k^N .

V.2.3.2 - Croissance naturelle et croissance artificielle.

Nous avons déjà fait allusion au phénomène de croissance des matériaux anisotropes sous irradiation. A part le cas bien connu de l'uranium [96] d'autres matériaux hexagonaux sont sujets à la croissance quand ils sont irradiés par des fragments de fission ; citons entre autres le zirconium α [95], et le cadmium [95]. Une expérience d'irradiation de rhénium aux neutrons rapides [97] peut même s'interpréter en terme de croissance bien que les résultats n'aient pas été exploités sous cet angle par l'auteur.

Dans tous ces métaux, il y a démixtion des vecteurs de Burgers suivant la nature de la boucle qui se forme, du fait de l'anisotropie des coefficients de dilatation thermique. Les boucles lacunaires auront en effet un vecteur tel qu'il y ait relâchement des contraintes de compression, donc un vecteur de Burgers dans la direction de compression maximale, c'est-à-dire de dilatation maximale. C'est naturellement l'inverse pour les boucles d'interstitiels.

Les expériences d'irradiation sous contrainte de matériaux isotropes, que nous proposons à la lumière du calcul ci-dessus participent de la même idée, à ceci près que le phénomène responsable de la démixtion des vecteurs de Burgers n'est plus l'anisotropie des coefficients de dilatation qui est très faible, mais l'interaction d'une contrainte appliquée de l'extérieur avec les boucles en train de germer dans la cascade. En toute rigueur, il existe, en plus, une petite anisotropie des coefficients de dilatation induite par la superposition d'une contrainte uniaxiale au tenseur des contraintes thermiques qu'on peut considérer comme isotrope. Mais la croissance résultant de cette anisotropie n'est qu'un terme correctif au terme d'interaction contrainte-énergie de boucle.

Si les moteurs diffèrent donc quelque peu, les résultats sont comparables et on peut parler dans le cas des matériaux isotropes de croissance artificielle induite par une contrainte.

V.2.4 - Conclusion.

Les calculs précédents suggèrent de réaliser des irradiations sous contrainte. On peut en attendre trois catégories de résultats importantes :

- 1) La germination puis l'observation de boucles anormales en irra-

diant à température ordinaire.

2) La détermination de la taille critique des boucles lacunaires en train de germer.

3) Une dissymétrie croissante des populations de boucles normales à vecteurs équivalents en fonction de la contrainte.

Pour tester le modèle qui précède, et préparer les expériences qui en découlent, nous avons imaginé un dispositif d'irradiation sous contrainte (cf. paragraphe V.2).

V. 3 - DISPOSITIF EXPERIMENTAL D'IRRADIATIONS SOUS CONTRAINTE.

Afin d'entreprendre les expériences d'irradiation sous contrainte amenées par les considérations théoriques que nous venons de développer, nous avons conçu et réalisé un dispositif²⁾ fonctionnant dans le réacteur TRITON à Fontenay-aux-Roses qui permet d'exercer une contrainte uniaxiale pouvant atteindre 150 kg/mm^2 sur un échantillon massif ou une lame mince de tungstène.

V. 3.1 - Principe de l'appareillage.

L'appareil est fondé sur le principe d'une presse hydraulique : une pression de quelques dizaines de bars d'argon est appliquée à un piston (1) placé au bout d'une perche descendant au coeur du réacteur, par l'intermédiaire d'un capillaire (2) d'une dizaine de mètres rempli d'eau. Le piston exerce une poussée verticale pouvant aller jusqu'à une tonne sur un conteneur (3) étanche retenu dans sa partie inférieure par une butée (4) solidaire de la perche. Ce conteneur renferme deux enclumes (5) en acier traité qui viennent serrer l'échantillon (6).

V.3.2 - Description détaillée.

On trouvera sur la figure 49 un schéma de l'installation.

²⁾ Je remercie vivement les responsables de la S. E. T. du Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses pour leur aide efficace ainsi que M. SIRE qui s'est occupé des études de cette réalisation.

V.3.2.1 - Transmission de la pression.

On exerce une pression grâce à une bouteille d'argon (7) pur située sur la plateforme ainsi que les accessoires de contrôle (8). L'argon a été choisi pour son inertie vis à vis de l'eau. Le capillaire est rempli d'eau jusqu'aux $\frac{2}{3}$ du volume tampon (9) ménagé en tête du dispositif. Il faut évidemment assurer l'étanchéité du circuit sous pression pour éviter toute fluctuation de la contrainte appliquée pendant le temps de l'irradiation qui peut être assez long.

Il ne semble pas qu'une éventuelle radiolyse de l'eau située au-dessus du piston puisse faire monter la pression. Celle-ci a toujours été très stable dans toutes nos expériences.

Le capillaire est un tube d'acier spécialement traité de diamètre 2 x 3 mm.

Le piston a une course de 2 mm environ grâce à un soufflet à spires soudées résistant aux fortes pressions et à la fatigue dû à un grand nombre de cycles. Cette course correspond au jeu initial entre les 2 enclumes situées dans le conteneur.

V.3.2.2 - Le conteneur - Les enclumes - L'échantillon.

Le conteneur est constitué de deux embases soudées sur un petit soufflet. C'est lui qui contient les enclumes et l'échantillon. C'est cet ensemble étanche qu'on introduit et qu'on retire du réacteur. Au laboratoire, il est ouvert grâce à un coupe tubes et on récupère l'échantillon.

La forme des enclumes a été étudiée pour qu'il n'y ait pas fluage intempestif et défaut de parallélisme des touches sous l'effet de la contrainte. Les faces d'appui sont rôdées pour obtenir une planéité parfaite. Le matériau qui convient le mieux est un acier 45NCD6 trempé et recuit à 280 °C pendant deux heures environ.

Les échantillons sont soit des lames minces, soit des feuilles de 10 microns à gros grains de tungstène. Ils sont positionnés entre les 2 enclumes par un centreur escamotable (10) à emmanchement doux en aluminium. La surface utile est un cercle de 3 mm de diamètre, ce qui donne un rendement en pression de 2 kg/mm² par bar dans le circuit basse pression. Il n'a pas été fait de mesure de contrainte in situ.

Pour les expériences d'irradiation par les particules de fission, les échantillons sont pris en sandwich entre deux pastilles d'uranium de 3 mm de diamètre et de 3/10 mm d'épaisseur.

V.3.2.3 - Contrôle de la pression et de la température.

La pression est lue directement sur le manodétendeur de la bouteille ainsi que sur un pressiostat à deux positions qui permet d'alerter l'opérateur au cas où la pression viendrait à descendre (fuite éventuelle) ou à monter (radiolyse de l'eau, fuite du détendeur ...). La contrainte est obtenue par la correspondance indiquée ci-dessus.

La température est contrôlée au voisinage de l'échantillon grâce à un thermocouple chromel-alumel (11) qui descend dans le piston (le conteneur étant étanche, on ne peut prendre la température à l'intérieur de celui-ci). Compte tenu de la géométrie du dispositif, on peut estimer que l'on connaît la température de l'irradiation par défauts à 20° près. Les enregistrements effectués montrent que la température est stable et vaut environ 79°C. L'échantillon ne doit donc pas dépasser 100°C ; cette température est très reproductible d'une expérience à l'autre, car nous travaillons toujours au même flux instantané ($\simeq 10^{13}$ n/cm². s.).

V.3.2.4 - Démontage et remontage de l'appareillage.

Quand une irradiation est terminée, la perche est remontée à 2 mètres sous le niveau de l'eau de la piscine et grâce à un système de déverrouillage par rotation de la perche, le conteneur peut être extrait sans difficulté de la butée qui lui tient lieu de support. Un système d'éjecteur est prévu au cas où le conteneur serait grippé sur la face d'appui du piston.

L'introduction d'un nouveau conteneur se fait en manoeuvrant de façon inverse.

Les photographies de la figure 50 donnent un aperçu de l'ensemble de l'installation, de la butée, du conteneur et des enclumes.

CONCLUSION

Le travail qui est décrit dans ce mémoire est axé sur trois thèmes principaux relatifs aux défauts ponctuels dans le tungstène. La technique utilisée est la microscopie électronique par transmission.

A) Les lacunes dans le tungstène.

Grâce à des expériences de trempe depuis le voisinage du point de fusion d'échantillons de tungstène en ruban ou en barreau dans un bain de gallium pur, on a pu mettre en évidence par microscopie électronique des boucles de dislocation purement coin de vecteur $\frac{1}{2} \langle 111 \rangle$, après un recuit d'une heure à 600°C. Les boucles grossissent avec la température de recuit. Ce type d'expériences est peu reproductible du fait des conditions expérimentales critiques à réaliser : la vitesse de trempe semble, d'après nos estimations, devoir dépasser $4 \cdot 10^5$ degrés/seconde, ce qui correspond à une concentration critique de 10^{-6} atomique en lacunes pour permettre une condensation en boucles observables par microscopie. En effet, tous les essais réalisés avec des bains à plus faible vitesse de trempe (gaz liquéfiés, mercure etc...) ont donné des résultats négatifs.

Nous avons déduit du nombre de boucles observées une valeur maximale de l'énergie de formation de la monolacune ($E_f^L < 3,6$ eV) qui est en bon accord avec les valeurs proposées jusqu'alors. De même, en se fondant sur les observations micrographiques en fonction de la température de recuit, on est conduit à proposer une valeur voisine de 2,5 eV pour l'énergie de migration de la lacune.

B) Comportement du tungstène sous irradiation.

Lorsque l'on soumet un échantillon massif de tungstène à une irradiation par les neutrons rapides (> 1 MeV), on ne voit apparaître de défauts par microscopie électronique qu'à partir d'une fluence seuil de quelques 10^{19} n/cm². On constate fréquemment un ancrage des dislocations par les amas d'irradiation. Par ailleurs un échantillon fortement écroui ne présente de "dots" qu'après un traitement thermique post-irradiation.

Ce qui caractérise le tungstène irradié par les particules de fission, c'est le comportement foncièrement différent de la courbe $N(\Phi)$ selon que l'échantillon est massif ou sous forme de lame mince. Faute de preuve expérimentale concernant la nature des boucles formées, nous avons développé un modèle concluant à la formation exclusive de boucles lacunaires par irradiation de lames minces, les interstitiels étant happés par les surfaces. Ces boucles sont en très petit nombre aux fluences moyennes : nous pensons donc qu'une zone doit être touchée par deux cascades de déplacements successives pour permettre la germination d'un nombre important de défauts, ce qui explique le départ retardé de la courbe $N(\Phi)$ dans ce cas.

En assimilant l'allure parabolique de cette courbe $N(\Phi)$ à une fonction de recouvrement superficiel $F_2(S)$, nous trouvons que le diamètre d'une cascade dans le tungstène doit se situer vers 150 Å.

Enfin, tous les défauts d'irradiation analysés par microscopie électronique se révèlent être des boucles de dislocation de vecteur de Burgers $\frac{1}{2} \langle 111 \rangle$. Lorsque le plan de la boucle peut être déterminé, on trouve que celle-ci est en général purement coin.

Si l'on compare avec les résultats afférents à des métaux "normaux" cuivre, or, aluminium etc..., nous retiendrons surtout de nos expériences d'irradiation la difficulté de nucléer des boucles par irradiation dans le tungstène.

C) Germination de boucles d'irradiation sous contrainte.

Nous avons étudié l'incidence que peut avoir l'application d'une contrainte uniaxiale sur la germination des boucles dans un échantillon en cours d'irradiation. Par l'intermédiaire de l'interaction contrainte-énergie de germination nous proposons un modèle qui conduit aux possibilités suivantes :

- la germination de boucles dites "anormales" de vecteur inhabituel $\langle 100 \rangle$ à condition d'appliquer la contrainte dans une direction $\langle 001 \rangle$ et sous réserve que cette contrainte soit supérieure à une contrainte critique σ_{cr} dont nous donnons l'expression théorique en fonction du nombre de défauts supposés contenus dans la boucle.

- l'anisotropie des populations de boucles parfaites possédant l'un des 4 vecteurs de Burgers équivalents de type $\frac{1}{2} \langle 111 \rangle$. Nous proposons l'ordre de grandeur de cette anisotropie en fonction de la direction et du module de la contrainte appliquée pour de toutes petites boucles d'interstitiels.

Ces deux phénomènes s'apparentent d'assez près à la "croissance naturelle" des matériaux anisotropes et on peut englober les expériences que suggère ce modèle sous le vocable de "croissance induite par une contrainte uniaxiale".

En liaison avec cette théorie, nous présentons un dispositif permettant d'irradier dans un réacteur à neutrons sous une contrainte uniaxiale pouvant atteindre $\mu/100$ dans le tungstène.

D) Suggestions.

Ces expériences d'irradiation sous contrainte auraient comme but essentiel de préciser les mécanismes de germination d'une boucle au sein d'une cascade de déplacements et de déterminer en particulier la taille critique correspondant à l'effondrement d'un amas de défauts en boucle de dislocation. Une "retombée" supplémentaire pourrait consister dans l'évaluation des contraintes engendrées par la pointe thermique, ce qui amènerait une meilleure connaissance des processus de dissipation de l'énergie initiale de l'atome primaire hors de la cascade.

Le modèle étant valable pour tout matériau isotrope (ou pseudo-isotrope) rien n'oblige à l'avenir de se limiter aux métaux à structure cubique centrée.

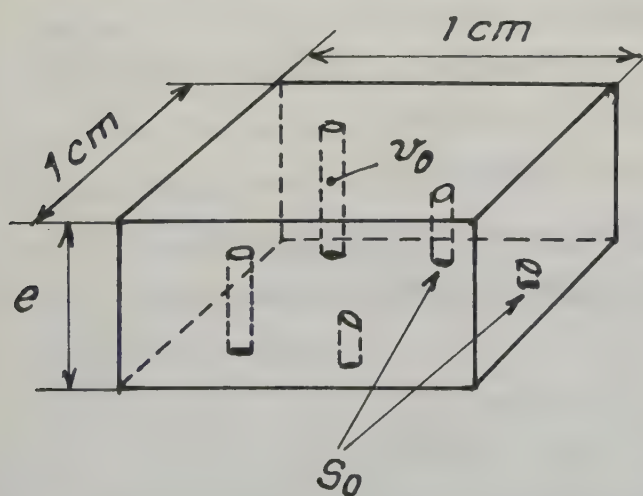
ANNEXE N° I

CALCUL DU COEFFICIENT DE CORRECTION DU AUX SUPERPOSITIONS DE BOUCLES DANS UNE LAME, AUX FORTES FLUENCES

Pour les fortes densités de boucles dans la lame mince, la probabilité pour qu'un défaut nouvellement formé se projette sur une boucle déjà existante n'est pas négligeable. De ce fait, certaines boucles échappent au comptage et il est nécessaire de corriger la mesure du nombre de boucles observées en projection sur l'écran par un facteur multiplicatif f . f est donc le rapport entre le nombre de boucles N réellement contenues dans un cm^3 de lame et la valeur N_m déduite de la mesure.

Nous proposons ici une évaluation simple de f .

Considérons un centimètre carré de lame d'épaisseur e . Soit S_0 la surface apparente moyenne en projection. Appelons $\mathcal{P}$ le nombre de



boucles par cm^2 de lame observée, soit $\mathcal{P} = eN$. Soit τ le taux moyen de création des boucles/ cm^3 en fonction de la fluence, c'est-à-dire : $\tau = \left(\frac{dN}{d\Phi} \right)$.

Il vient : $\tau = \frac{1}{e} \left(\frac{d\mathcal{P}}{d\Phi} \right)$.

Calculons la probabilité p qu'un défaut supplémentaire soit caché par une boucle préexistante : p est mesuré par la surface totale occupée par les boucles, rapportée à la surface unité, soit :

$$p = S_0 \cdot \tau \cdot \Phi$$

Supposons que $d\Phi$ particules de fission viennent frapper la lame mince. Il en résulte un nombre supplémentaire de boucles vues $d\mathcal{P}$ donné par :

$$d\mathcal{P} = \frac{d\mathcal{P}}{d\Phi} (1 - p) d\Phi$$

d'où :

$$\mathcal{P}_m = \int_0^{\Phi} \frac{d\mathcal{P}}{d\Phi} d\Phi - \frac{d\mathcal{P}}{d\Phi} \int_0^{\Phi} \frac{d\mathcal{P}}{d\Phi} \cdot S_o \cdot \tau \Phi d\Phi$$

ou encore

$$\mathcal{P}_m = \mathcal{P} - S_o \cdot \tau \int_0^{\Phi} \frac{d\mathcal{P}}{d\Phi} \Phi d\Phi$$

en supposant que $\frac{d\mathcal{P}}{d\Phi}$ soit voisin de τ aux fluences qui nous intéressent, il vient :

$$\frac{N_m}{N} = \frac{\mathcal{P}_m}{\mathcal{P}} = 1 - \frac{S_o \tau^2 e^2}{\mathcal{P}} \cdot \frac{\Phi^2}{2}$$

et en remplaçant $\mathcal{P}$ par eN :

$$f = \frac{N}{N_m} = \frac{1}{1 - \frac{S_o e \Phi^2}{2 N} \tau^2}$$

Si on pose $S_o e = \nu_o$, on voit que ν_o représente le volume du cylindre de lame cachée par une boucle située en surface. On peut écrire :

$$f = \frac{1}{1 - \frac{\nu_o}{2} \cdot \frac{(\Phi \tau)^2}{N}}$$

Exemple d'application du facteur correctif :

Le dernier point de la courbe de la figure a pour coordonnées brutes :

$$\begin{aligned} \Phi &= 1,5 \cdot 10^{14} \text{ f.f./cm}^2 \\ N_m &= 1,1 \cdot 10^{16} \text{ amas/cm}^3 \end{aligned}$$

En appliquant la formule ci-dessus aux valeurs numériques suivantes :

$$\begin{cases} S_o &= 4 \cdot 10^{-12} \text{ cm}^2 \text{ (boucles de } 250 \text{ Å diamètre)} \\ e &= 10^{-5} \text{ cm} \\ \tau &= 10^2 \text{ amas/cm}^3 \text{ /fission} \end{cases}$$

on trouve :

$$f = 1,5$$

donc le point considéré a pour ordonnée réelle :

$$N = f \cdot N_m = 1,7 \cdot 10^{16}$$

ANNEXE N° II

INFLUENCE DES SURFACES SUR LA NUCLEATION DE BOUCLES D'INTERSTITIELS DANS UNE LAME MINCE IRRADIEE

1 - INTRODUCTION.

Nous nous intéressons ici à l'irradiation de lames minces métalliques, c'est-à-dire transparentes aux électrons (typiquement de 1 000 Å d'épaisseur environ), par des fragments de fission ou des ions lourds. Nous nous proposons de justifier par un modèle de germination et de croissance des boucles d'interstitiels, l'hypothèse de la nature lacunaire des boucles de dislocation observées au microscope électronique par irradiation de lames minces.

Les interstitiels présents dans le métal, à un instant donné de l'irradiation ont été créés en même temps que les lacunes au sein des cascades de déplacements (chocs atomiques à fort transfert d'énergie). Le problème consiste à calculer la probabilité qu'a un interstitiel de se condenser sur un noyau d'interstitiels préexistant - à l'origine un diinterstitiel - pour favoriser la croissance de ce noyau jusqu'à une taille critique où il deviendra observable, cette taille étant fonction du pouvoir séparateur du microscope électronique (20 Å environ).

Nous nous trouvons en présence d'une forte concentration en interstitiels à l'instant zéro de la cascade, dans un très petit volume de matière. Cette concentration est de plus variable dans l'intervalle de temps qui sépare deux événements perturbateurs consécutifs au même endroit.

Nous savons que, quelques périodes de vibrations atomiques après la formation de la cascade de déplacements, l'énergie de la pointe thermique est complètement dissipée, si bien que le volume intéressant les atomes

déplacés est à température ambiante $\ll 100$. Nous supposons d'autre part que les énergies de migration relatives des interstitiels et des lacunes sont telles qu'à cette température seuls les interstitiels sont mobiles. Les lacunes sont donc des puits fixes pour les interstitiels.

Pour simplifier le calcul, nous sommes contraints d'admettre que les défauts ponctuels sont répartis de façon homogène dans le volume V de la cascade de déplacements. Cette approximation est d'autant plus légitime que le métal est plus léger.

Le principe du calcul repose sur la comparaison du temps nécessaire à la formation d'un amas interstitiel visible avec le temps mis par un interstitiel pour gagner la surface depuis le centre de la lame mince. Nous faisons, en outre, l'hypothèse défavorable que tous les interstitiels de la cascade contribuent à la croissance d'un amas unique.

Appelons N_0 le nombre initial des paires de Frenkel créées dans le volume V , N' le nombre d'interstitiels à l'instant t , N'' le nombre de lacunes à l'instant t et n le nombre d'interstitiels condensés à ce même instant.

Evaluons N'' . Cette grandeur est égale au nombre initial de lacunes N_0 diminué du nombre de lacunes annihilées par les interstitiels. Soit P_{L-I} la probabilité d'un tel évènement jusqu'à l'instant t . Nous avons :

$$N'' = N_0 (1 - P_{L-I})$$

Soit Z le nombre de sites défini plus haut. La probabilité élémentaire pour qu'un interstitiel rencontre une seule lacune dans le volume V peut s'écrire approximativement :

$$P_e = Z \cdot \nu_T \cdot \frac{V}{V} \cdot t$$

Cette probabilité est proportionnelle au volume engendré par l'interstitiel au cours du temps. Nous ne pouvons cependant appliquer une telle formule que pour des temps t relativement courts. Au delà, nous devons employer l'expression rigoureuse tirée de la théorie des probabilités :

$$P_e = 1 - \exp \left(- Z \cdot \nu_T \cdot \frac{V}{V} \cdot t \right)$$

Si nous considérons maintenant N_0 lacunes dans le volume V , P_{L-I} s'écrit :

$$P_{L-I} = 1 - (1 - P_e)^{N_0} = 1 - \exp(-N_0 \cdot Z \cdot \frac{v}{V} \cdot \nu_T t)$$

ou, en posant $\frac{V}{v} = \alpha$:

$$P_{L-I} = 1 - \exp(-N_0 \cdot \frac{Z}{\alpha} \cdot \nu_T t)$$

d'où :

$$N'' = N_0 \cdot (1 - \exp(-N_0 \cdot \frac{Z}{\alpha} \cdot \nu_T t))$$

Evaluons N' le nombre d'interstitiels survivants à l'instant t , donc susceptibles de contribuer au grossissement de l'amas interstitiel :

$$N' = N'' - n = N_0 (1 - \exp(-N_0 \cdot \frac{Z}{\alpha} \cdot \nu_T t)) - n$$

Calculons maintenant la vitesse de croissance dn/dt de cet amas. Il nous faut pour cela connaître la proportion P d'interstitiels qui choisiront d'aller se condenser sur l'amas considéré plutôt que de se combiner avec l'une des lacunes présentes dans la cascade de déplacements. Nous supposons ici qu'il n'y a pas d'autres possibilités pour l'interstitiel ; la somme des probabilités des deux événements est donc égale à l'unité.

$$P = \frac{\text{probabilité de condensation sur la boucle}}{\text{probabilité de condensation} + \text{probabilité d'annihilation}} = \frac{P_B}{P_B + P_A}$$

La probabilité de condensation sur un amas supposé en forme de boucles est proportionnelle au nombre Z'' de sites entourant une position atomique du périmètre de la boucle et au nombre de ces positions :

$$P_B \propto 3 n^{1/2} \cdot Z''$$

$$P_A \propto N'' Z$$

d'où :

$$P = \frac{3 n^{1/2} Z''}{3 n^{1/2} Z'' + N'' Z}$$

Le nombre d'interstitiels qui se sont condensés sur la boucle pendant l'intervalle de temps t est égal à $N'P$. Nous en déduisons immédiatement le taux de croissance de la boucle :

$$\frac{dn}{dt} = \frac{1}{t} \cdot N'P$$

En reportant les expressions de N' et de P trouvées ci-dessus, nous obtenons l'équation différentielle :

$$\frac{dn}{dt} = \frac{3 Z'' \left\{ N_0 \left[1 - \exp \left(- N_0 \cdot \frac{Z}{\alpha} \cdot \nu_T t \right) \right] - n \right\} n^{1/2}}{\left\{ N_0 Z \left[1 - \exp \left(- N_0 \cdot \frac{Z}{\alpha} \cdot \nu_T t \right) \right] + 3 Z'' n^{1/2} \right\} t} \quad (1)$$

Cette équation n'est pas intégrable, il nous faut donc faire des simplifications.

Définissons le temps t_s (temps seuil) au delà duquel le terme exponentiel est négligeable devant 1, c'est-à-dire inférieur à 0,1 ; calculons t_s :

$$t_s \approx \frac{2,5 \alpha}{N_0 Z \cdot \nu_T}$$

Avec les valeurs numériques suivantes

$$\begin{aligned} N_0 &= 2 \cdot 10^3 & \alpha &= 10^5 \\ Z &= 80 & \nu_T &= 10^{12} \end{aligned}$$

on a :

$$t_s \approx 1,5 \cdot 10^{-12} \text{ s.}$$

Donc, pour un temps supérieur à 15 périodes de vibrations atomiques environ, il est légitime de faire l'approximation ci-dessus. Notons que ce temps t_s est inférieur au temps de nucléation par simple mouvement aléatoire du diinterstitiel qui est supposé à l'origine de l'amas. dn/dt peut alors s'écrire :

$$\frac{dn}{dt} = \frac{3 Z'' (N_0 - n) n^{1/2}}{(Z N_0 + 3 n^{1/2} \cdot Z'') t} \quad (1')$$

En prenant $Z'' = 10$, on constate maintenant que le terme $3 Z'' n^{1/2}$ est toujours très inférieur à $Z N_0$. D'où l'équation simplifiée suivante :

$$n^{-1/2} \cdot \frac{dn}{dt} = \frac{3 Z''}{Z N_0} (N_0 - n) \quad (1'')$$

Intégrons cette équation à variables séparables. Il vient :

$$\frac{1 + \sqrt{\frac{n}{N_0}}}{1 - \sqrt{\frac{n}{N_0}}} = \left(\frac{t}{t_0} \right)^{\frac{3 Z''}{Z \cdot N_0}} \quad (2)$$

où t_0 est une constante d'intégration que nous allons déterminer par une condition aux limites. Celle-ci exprime le temps de nucléation du diinterstitiel. Ce temps s'obtient facilement en considérant la distance moyenne entre deux interstitiels dans la cascade à l'instant initial. On montre facilement

qu'il est de l'ordre de 10^{-11} s. En écrivant que $n = 2$ pour $t = 10^{-11}$ s., on trouve que $t_0 \simeq 10^{-14}$ s. En remarquant que $n \ll N_0$, l'équation (2) peut encore s'écrire sous la forme approchée plus simple :

$$\sqrt{n} = \frac{3 Z''}{2 Z} \cdot \text{Log} \frac{t}{t_0} \quad (2')$$

Remarquons que N_0 ne figure plus dans cette expression ; donc, en première approximation, la croissance de la boucle ne dépend pas de la concentration initiale en défauts ponctuels, donc de l'énergie du P.A.F.

Exprimons le temps t_F de formation d'une boucle d'interstitiels tout juste visible par microscopie électronique, contenant N défauts ($N \simeq 20$).

$$t_F = t_0 \exp \left(\frac{2 Z \sqrt{N}}{3 Z''} \right) \quad (3)$$

Nous admettons maintenant que la boucle ne grossira plus quand le libre parcours moyen des interstitiels atteindra une valeur L égale à environ dix fois la distance maximale $\frac{e}{2}$ le séparant de la surface, e représentant l'épaisseur de la lame mince. En effet, une fois ce parcours atteint, la perte d'interstitiels par les surfaces abaisse brutalement la concentration d'interstitiels subsistant dans la cascade.

Soit t_L le temps de migration correspondant à ce parcours, on a :

$$L = a \cdot \sqrt{\nu_T \cdot t_L}$$

$$\text{d'où :} \quad t_L = \frac{1}{\nu_T} \left(\frac{L}{a} \right)^2 \quad (4)$$

où a est la distance interatomique.

En égalant t_L et t_F nous arrivons à l'expression d'une épaisseur critique e_c de lame mince en dessous de laquelle une boucle d'interstitiels ne pourra jamais atteindre une taille suffisante pour être observée :

$$\frac{1}{\nu_T} \left(\frac{L}{a} \right)^2 = t_0 \exp \left(\frac{2 Z \sqrt{N}}{3 Z''} \right)$$

Or $L = 5 \cdot e_c$, donc :

$$e_c \simeq \frac{a}{5} \cdot \sqrt{\nu_T t_0} \cdot \exp \left(-\frac{Z \sqrt{N}}{3 Z''} \right) \quad (5)$$

Faisons apparaître l'énergie de migration de l'interstitiel dans cette formule :

$$e_c \simeq \frac{a}{5} \cdot \sqrt{\nu_0 \cdot A \cdot t_0} \exp \left[\frac{Z \cdot \sqrt{N}}{3 Z''} - \frac{E_m^L - TS_m^L}{kT} \right] \quad (5')$$

ν_0 est la fréquence de Debye, A la coordonnée du métal, E_m^L et S_m^L les enthalpie et entropie de migration de l'interstitiel.

Applications numériques.

Appliquons ce résultats au tungstène. L'énergie de migration est assez mal connue. Prenons la égale à 0,25 eV.

En prenant d'autre part $S_m \simeq 0$ et $\frac{Z}{Z''} \simeq 10$, on trouve :

$$e_c \simeq 1\,400 \text{ Å}^\circ$$

On constate que pour des lames raisonnablement mince ($1\,000 \text{ Å}^\circ$) les boucles de dislocations observées ont toutes les chances d'être lacunaires.

ANNEXE N° III

CONTRAINTE DE COMPRESSION CRITIQUE RELATIVE AUX BOUCLES DE LACUNES

Soient σ_A , W_A les coordonnées du point A, σ_B , W_B celles de B dans la figure . Appelons p_1 et p_2 les pentes arithmétiques respectives des droites PB et OB figurant l'énergie des boucles. Remarquons que PA et PB symétriques par rapport à une horizontale, elles ont la même pente p_1 .

Nous pouvons écrire quel que soit N :

$$\sigma_A = \frac{OP}{p_1} = \frac{W_{i,0}}{p_1} = \sigma_{cr.I}$$

$$\sigma_B = \frac{W_B}{p_2} = \sigma_{cr.I}$$

Or :

$$W_B = \Delta W_{i,0} + \sigma_B \cdot p_1$$

donc :

$$\sigma_B = \frac{W_{i,0} + \sigma_B \cdot p_1}{p_2}$$

il vient :

$$\sigma_B = \frac{W_{i,0}}{p_2 - p_1}$$

d'où :

$$\frac{\sigma_B}{\sigma_A} = \frac{p_1}{p_2 - p_1} = \frac{1}{\frac{p_2}{p_1} - 1}$$

Or les pentes sont dans le rapport $\frac{p_1}{p_2} = \cos \theta = \frac{1}{\sqrt{3}}$. Donc

$$\frac{\sigma_B}{\sigma_A} = \frac{1}{\sqrt{3} - 1} \approx 1,35 \quad \text{d'où :} \quad \sigma_{cr.L} \approx 1,35 \sigma_{cr.I}$$

On voit que ce résultat est bien celui que nous avons annoncé dans le texte : $\sigma_{cr.L}$ reste proportionnel à $\sigma_{cr.I}$ quand N et $\Delta W_{i,0}$ varient. Les deux courbes $\sigma_{cr.}(N)$ se déduisent l'une de l'autre par une simple affinité.

ANNEXE N° IV

BASCULEMENT D'UNE BOUCLE $\frac{1}{2} \langle 111 \rangle$ SOUS CONTRAINTE ¹⁾

Considérons une boucle de vecteur $\frac{1}{2} \langle 111 \rangle$ purement coin. Sous l'effet d'une contrainte uniaxiale $\vec{\sigma}$ faisant un angle θ avec le vecteur de Burgers, celle-ci va basculer autour de la normale au plan $(\vec{b}, \vec{\sigma})$, d'un angle Ψ .

Pour évaluer la fonction $\Psi(\theta, \sigma)$ il nous faut minimiser l'énergie totale W à fournir à la boucle pour sa germination. On a vu que W s'écrit :

$$W = W_i + W'$$

où W_i est l'énergie intrinsèque de la boucle et W' le terme d'interaction avec la contrainte.

L'énergie W_i varie quand la boucle bascule ne serait ce qu'à cause de l'augmentation de son périmètre. BACON [101] a calculé les énergies élastiques de boucles de dislocations elliptiques obtenues par rotation de la boucle initialement circulaire sur son cylindre de glissement.

Nous avons dérivé du faisceau de courbes qu'il propose, une expression empirique qui traduit correctement l'énergie d'une boucle dont le rayon est environ 5 fois le rayon de coeur. Elle s'écrit :

$$W_i = W_{i,0} [1 + a \Psi^p]$$

où W_i représente l'énergie de la boucle à $\Psi = 0$ (à contrainte nulle). Les valeurs de a et p qui représentent le mieux la courbe de BACON sont :

$$\begin{cases} a = 0,169 \\ p = 4,21 \end{cases}$$

Le terme d'interaction W' s'écrit :

$$W' = |\vec{b}_{S'}| \cdot |\vec{\sigma}_{S'}| \cdot S'$$

où $b_{S'}$ et $\sigma_{S'}$ sont les projections de $\vec{b}$ et $\vec{\sigma}$ sur la nouvelle normale S'

¹⁾ Je remercie M. J. L. POUCHOU qui a exploité l'article de BACON et effectué le programme de ce calcul

au plan de la boucle et S' la nouvelle surface de celle-ci.

Il vient : $W' = b \cdot \sigma \cdot S \cdot \frac{\cos(\theta + \Psi) \cdot \cos \theta}{\cos \Psi}$ avec $\theta = \widehat{(b, S)}$
et $\Psi = \widehat{(S', S)}$

donc : $W = W_{i,0} [1 + a \Psi^p] + \sigma b S \frac{\cos(\theta + \Psi) \cdot \cos \theta}{\cos \Psi}$

Ecrivons que $\frac{dW}{d\Psi} = 0$, il vient :

$$\Psi^{p-1} \cos^2 \Psi - \frac{\sigma \cdot b \cdot S \sin 2\theta}{2 a \cdot p \cdot W_{i,0}} = 0$$

Nous avons calculé le zéro de cette expression à la machine (cf. note de la page 73) pour des valeurs de σ allant jusqu'à 150 kg/mm^2 et pour les angles α correspondant aux directions cristallographique importantes. $W_{i,0}$ est calculé comme il a été indiqué dans le paragraphe V.1.2.2. Les valeurs des angles de basculement sont en général assez faibles aux contraintes où l'on opère. Le tableau suivant en donne une illustration dans le cas d'une boucle de 20 défauts de vecteur de Burgers $[\bar{1}11]$ soumise à une contrainte variable dans la direction $[\bar{1}10]$, soit pour $\alpha = 35,26$ degrés. L'énergie totale de la boucle est également indiquée sur ce tableau.

Boucle de 20 défauts $\vec{b} = \frac{1}{2} [\bar{1}11]$		
Contrainte kg/mm^2 $\sigma // [\bar{1}10]$	Angle de basculement degrés	Energie eV
10	8,5	60,99
20	10,6	61,10
30	12,1	61,21
40	13,2	61,33
50	14,2	61,43
60	15,1	61,54
70	15,9	61,65
80	16,6	61,75

BIBLIOGRAPHIE

- [1] J.N. BESHES -
J.A.P. 36 (1965) 290.
- [2] H. SCHULTZ -
Mater. Sc. Eng. 3 (1968-69) 189.
- [3] D.P. SERAPHIM, N.R. STEMPLE, D.T. NOVICK -
J.A.P. 33 (1962) 136.
- [4] R.E. VILLAGRANA, G. THOMAS -
Phys. Stat. Sol. 9 (1965) 499.
- [5] W. DANNENBERG -
Metall. 15 (1961) 977.
- [6] R.L. ANDELIN, J.D. KNIGHT, M. KAHN -
Trans. AIME 233 (1965) 19.
- [7] H. SCHULTZ -
Lattice Defects in quenched Metals
Academie Press, N.York (1965) p.761.
- [8] Y.A. KRAFTMACHER, P.G. STRELKOV -
Sov. Phys. Sol. State 4 (1963) 1662.
- [9] M.J. ATTARDO, J.M. GALLIGAN -
Phys. Stat. Sol. 16 (1966) 449.
- [10] D.P. GREGORY -
Acta Met. 11 (1963) 623.
- [11] HARVEY BROOKS -
Impurities and imperfections - ASM New-York (1957).
- [12] T.H. BLEWITT, R.R. COLTMAN, C.E. KLABUNDE,
D.L. MAC DONALD, J.K. REDMAN -
ORNL-LR-DWG 62628 p.15
ORNL-LR-DWG 50440 R p.16.
- [13] G.H. KINCHIN, M.W. THOMPSON -
J. Nucl. Energy 6 (1958) 275.
- [14] P. LUCASSON -
Compt. Rendus 245 (1957) 66.
- [15] J. NIHOUL -
Vacancies and interstitials in metals - Noth-Holland (1968).

- [16] D.G. MARTIN -
Acta Met. 5 (1957) 371.
- [17] R.C. KOO, R.W. CLOUGH (ed.) -
Reactive Metals Interscience N.Y. (1963) p. 265.
- [18] D.E. PEACOCK, A.A. JOHNSON -
Phil. Mag. vol. 8 n°88 (1963) p. 563.
- [19] M.K. SINHA, E.W. MULLER -
J.A.P. 35 (1964) 1256.
- [20] J.A. DI CARLO, C.L. SNEAD, A.N. GOLAND -
Bull. Am. Phys Soc. 13 (1968) 381.
- [21] H.H. KUHLMANN, H. SCHULTZ -
Acta Met. 14 (1966) 798.
- [22] H.H. NEELY, D.W. KEEFER, A. SOSIN -
Phys. Stat. Sol. 28 (1968) 675.
- [23] D.M. MAHER, B.L. EYRE -
Phil. Mag 17 (1968) 1.
- [24] J. MOTEFF -
Report GE-TM-65-9-2 (1965).
- [25] J.D. MEAKIN, I.D. GREENFIELD -
Phil. Mag. 11 (1965) 277.
- [26] J.D. MEAKIN, A. LAWLY, R.C. KOO -
App. Phys. Letters 5 (1964) 133.
- [27] D. JEANNOTTE, J.M. GALLIGAN -
Phys. Rev. Letters 19 (1967) 232.
- [28] R.A. JOHNSON -
Diffusion in b.c.c. metals - ASM Ohio (1965).
- [29] R.A. JOHNSON -
Phys. Rev 134 (1964) A 1329.
- [30] H. SCHULTZ -
Acta Met. 12 (1964) 649.
- [31] R. GRIPSHOVER, M. KHOSHNEVISAN, J.S. ZETTS, J. BASS -
Phil. Mag. 22 (1970) p. 757.
- [32] W. CARRINGTON, K.F. HALE, D. McLEAN -
Proc. Roy. Soc. 1297 (1960) 203.

- [33] J.B. COHEN, R. HINTON, K. LAY, S. SASS -
Acta Met 10 (1962) 894.
- [34] P.B. HIRSCH -
Fifth Intern. Congress of Cristallography - Cambridge (1960).
- [35] B. ŠESTAK, N. ZÁRUBOVÁ -
Phys. Stat. Solidi 10, 239 (1965).
- [36] B. ESCAIG -
Journal de Physique 28, 171 (1967).
- [37] J. et J. WEERTMAN -
Théorie Élémentaire des Dislocations - Masson (1970).
- [38] A.W. SLEESWYK -
Acta Met. 10 (1962) 705.
- [39] E. VOTAVA, A.W. SLEESWYK -
Acta Met. 10 (1962) 965.
- [40] A.H. COTTRELL -
Trans. AIME 212 (1958) 192.
- [41] A.N. STROH -
Advances in Physics 6 (1957) 418.
- [42] R.E. PAWEL, T.S. LUNDY -
Acta Met. 17 (1969) 979.
- [43] H. SCHULTZ -
Déjà cité.
- [44] W.J.M. TEGGART -
The Electrolytic and Chemical Polishing of Metals
Pergamon Press (1956).
- [45] J.L. YOUNGBLOOD -
Trans. ASM 62 p. 1019. (1969).
- [46] A BOURRET, Y. LE COADIC -
Rapport CEA Paris n° 3258 (1967).
- [47] P. BUBOTS -
Rapport D.E.A. INSTN (1970).
- [48] J. LETEURTRE -
Thèse Faculté Orsay (1968).

- [49] P.B. HIRSCH -
Electron Microscopy of Thin Crystals London Butterworths (1965).
- [50] W. CARRINGTON, K.F. HALE, D. McLEAN -
Déjà cité.
- [51] Y. NAKAYAMA, S. WEISSMANN, T. IMURA -
Direct observation of Imperfections in Crystals p. 573
Interscience (1961).
- [52] Y. QUERE -
Thèse Faculté des Sciences Paris (1961).
- [53] J. NIHOUL -
Communication personnelle - Centre de Mol - Belgique.
- [54] R. BIGOT, R. FAIVRE -
Revue Métallurgie t. III, n°2 (1956) 131.
- [55] J. LETEURTRE -
Communication personnelle - CEA Fontenay-aux-Roses.
- [56] P.B. HIRSCH -
Déjà cité.
- [57] J.D. MEAKIN, A. LAWLEY, R.C. KOO -
Déjà cité.
- [58] A. SEEGER, H. MEHRER -
Vacancies and Interstitials in Metals - Jülich (1966) 41.
- [59] J. LINDHARD, M. SCHARFF, H.E. SCHIOT -
Math. -Fys. Meddr. 33, n°4 (1963).
- [60] J.A. BRINKMAN -
Proceedings Academic Press p. 830 (1962).
- [61] J.P. GENTHON -
Communication personnelle - C.E.N. Saclay.
- [62] A. SEEGER -
Radiation Damage in Solids - Venise (1962).
- [63] J.R. BEELER, D.G. BESCO -
Radiation Damage in Solids - Vienne (1962) p. 43.
- [64] I. TORRENS -
Communication personnelle.

- [65] J. MASOUNAVE -
Thèse 3è cycle - Fac. Sciences Paris (1970).
- [66] P.B. HIRSCH -
Déjà cité.
- [67] M. RUHLE -
Phys. Stat. Solidi 19, 263 (1967).
- [68] K. LACEFIELD, J. MOTEFF, J.P. SMITH -
Phil. Mag. 13, 1079 (1966).
- [69] K.L. MERKLE -
Phys. Stat. Solidi 18, 173 (1966).
- [70] C.B. FULMER -
Rapport ORNL n°2320 - Chapitre IV p. 48.
- [71] A. BRENAC -
Xe Colloque de Métallurgie Saclay (1966) p. 13.
- [72] R.C. RAU -
Phil. Mag. 18, 1079 (1968).
- [73] J.D. MEAKIN, I.G. GREENFIELD -
Phil. Mag. 11, 277 (1965).
- [74] P.R.B. HIGGINS -
J. Less Common Metals 6, 472 (1964).
- [75] J.T. BUSWELL -
Phil. Mag. 22, 391 (1970).
- [76] J.M. GALLIGAN, T. OKU -
Phys. Stat. Solidi 36, K 79 (1969).
- [77] D.A. SMITH -
Phys. Stat. Solidi 39, K 101 (1970).
- [78] B. MASTEL, H.E. KISSINGER, J.J. LAIDLER, T.K. BIERLEIN -
J. Applied Physics 34, 12 p. 3637 (1963).
- [79] D. VAN VLIET, L.T. CHADDERTON -
Phil. Mag. 16, 275 (1967).
- [80] A. BRENAC et J. MASOUNAVE -
Colloque franco-suisse de microscopie électronique - LAUSANNE (1969).
- [81] J. LETEURTRE -
Déjà cité.

- [82] A.D. WHAPHAM, B.E. SHELDON -
Phil. Mag. 12, 1179 (1965).
- [83] J.P. GENTHON -
Déjà cité.
- [84] M.J. MAKIN -
Phil. Mag. 20, 1133 (1969).
- [85] R. BULLOUGH -
Radiation Damage in Solids Vienne (1969).
- [86] J.A. SIGLER, D. KUHLMANN-WILSDORF -
Phys. Stat. Solidi 21, 545 (1967).
- [87] R.A. JOHNSON -
Phil Mag. 16, 553 (1967).
- [88] B.C. MASTERS -
Note RD/B/n° 321 (Part II) Central Electricity Generating
Board - BNL (1964).
- [89] B.L. EYRE, R. BULLOUGH -
Phil. Mag. 12, 31, (196).
- [90] G. SILVESTRE -
Communication personnelle - C.E.N. Grenoble.
- [91] J. PONSOYE -
Rad. Effects 8, 13, (1971).
- [92] J.P. HIRTH, J. LOTHE -
Theory of Dislocations Mc Grow Hill New-York (1968).
- [93] R.S. NELSON -
Phil. Mag. 11, 291 (1965).
- [94] J. PONSOYE, Y. QUERE -
Radiation Effects 1, 141 (1969).
- [95] S.N. BUCKLEY -
Properties of reactor materials and the effects of radiations
damage LITTLER (Butterworths Scient. Public.).
- [96] C. WEINBERG, J. DURAL, R.R. CONTE, J. LETEURTRE,
G. VOGL, K. BONING -
Phys. Stat. Solidi 1, K 151 (1970).
- [97] H.E. KISSINGER -
Phil. Mag. 17, 871 (1968).

- [98] J.F. CORNET -
Thèse Faculté d'Orsay (1970).
- [99] "Diffusion in B.C.C. Metals". ASM Ohio (1965).
- [100] J.B. GIBSON, A.N. GOLAND, M. MILGRAM, G.H. VINEYARD -
Phys. Review 120, 1229 (1960).
- [101] D.J. BACON -
Phil. Mag. 18, 561 (1968).

Manuscrit reçu le 9 juin 1971

LEGENDES DES FIGURES

- Figure 1 - Sites octaédrique et tétraédriques.
- Figure 2 - Guérison de la résistivité du tungstène irradié aux électrons.
- Figure 3 - Famille des vecteurs $\frac{a}{2} \langle 111 \rangle$.
- Figure 4 - Dissociation de COHEN-CRUSSARD.
- Figure 5 - Défaut d'empilement $\{112\}$.
- Figure 6 - Effet de la température sur la limite élastique des métaux cubiques centrés.
- Figure 7 - Dispositif de polissage à double jet.
- Figure 8 - Détermination graphique de la distance d'extinction ξ_g dans le tungstène.
- Figure 9 - Microscopie optique.
- Figure 10 - Aspect micrographique du tungstène brut de laminage.
- Figure 11 - Tungstène recuit à 900°C.
- Figure 12 - Apparition de sous-joints dans le tungstène recuit à 1100°C.
- Figure 13 - Aspect du tungstène recristallisé (recuit > 2000°C).
- Figure 14 - Configuration des dislocations dans le tungstène très écroui.
- Figure 15 - Exemple de dislocations rectilignes engendrées par pliage.
- Figure 16 - Réseau de dislocations.
- Figure 17 - Défaut plan dans le tungstène.
- Figure 18 - Enregistrement de la vitesse de trempe dans l'argon liquide.
- Figure 19 - Trempe de tungstène dans l'alliage de Wood.
- Figure 20 - Trempe au mercure : observation de précipités.
- Figure 21 - Trempe au gallium : tungstène brut de trempe.
- Figure 22 - Dispositif de trempe dans un bain métallique (schéma).
- Figure 23 - Dispositif de trempe dans un bain métallique (photo).
- Figure 24 - Trempe au gallium : tungstène trempé recuit 1h. à 600°C.
- Figure 25 - Trempe au gallium : tungstène trempé recuit 1h. à 800°C.
- Figure 26 - Zone dénudée au voisinage des joints de grains (tungstène trempé au gallium recuit 1 h. à 800°C).
- Figure 27 - Analyse des boucles de trempe (tungstène trempé au gallium recuit 1h. à 800°C).
- Figure 28 - Dissipation d'énergie par collisions atomiques.

- Figure 29 - Simulation d'une cascade de déplacements.
- Figure 30 - Rendement des produits de fission en fonction de la masse.
- Figure 31 - Schéma de l'irradiation de lames minces par les P.F.
- Figure 32 - Dispositifs d'irradiation.
- Figure 33 - Mesure de l'épaisseur d'une zone observée.
- Figure 34 - Contrastes noir-blanc (théorie de Rühle).
- Figure 35 - Echantillon (BL) irradié aux neutrons .
- Figure 36 - Echantillon (R₁₂) irradié aux neutrons.
- Figure 37 - Aspect de (BL) après un recuit à 1200°C.
- Figure 38 - Inhomogénéité des dégâts d'irradiation (R₁₂ recuit à 600°C).
- Figure 39 - Ancrage de dislocation par les amas d'irradiation.
- Figure 40 - Irradiation aux particules de fission : $\phi = 15 \cdot 10^{10}$.
- Figure 41 - Irradiation aux particules de fission : $\phi = 4 \cdot 10^{11}$.
- Figure 42 - Irradiation aux particules de fission : $\phi = 3 \cdot 10^{13}$.
- Figure 43 - Courbe N (Φ) - Cas d'échantillons massifs.
- Figure 43 bis - Courbe N (Φ) - Cas des lames minces.
- Figure 44 - Analyse des contraste noir-blanc sur le tungstène irradié.
- Figure 45 - Energie des différents types de boucles en fonction d'une contrainte de compression $[001]$.
- Figure 46 - Variation de ΔW_i en fonction de N .
- Figure 47 - Variation de la contrainte critique en fonction de N .
- Figure 48 - Probabilités de germination calculées ($\vec{\sigma}$ parallèle à $[111]$).
- Figure 49 - Dispositif d'irradiation sous contrainte (schéma).
- Figure 50 - Dispositif d'irradiation sous contrainte (photo).

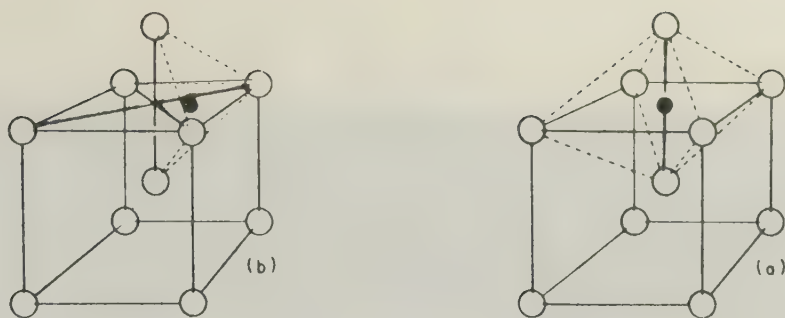


Figure n° 1 : Sites tétraédriques et octaédriques. (structure C.C.)

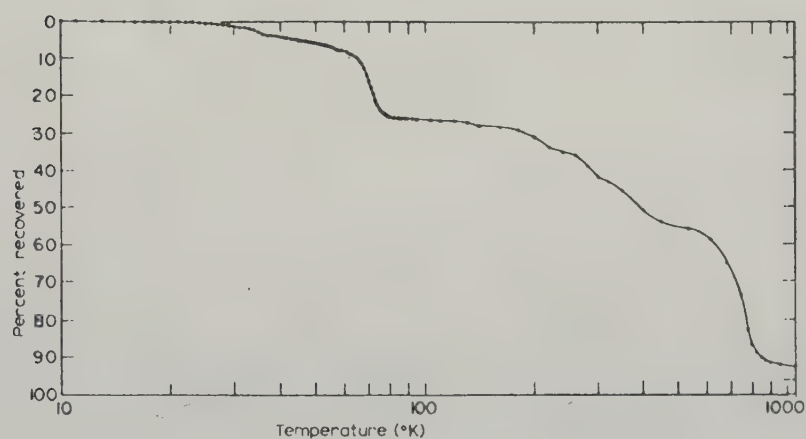


Figure n° 2 : Guérison du tungstène irradié aux électrons.

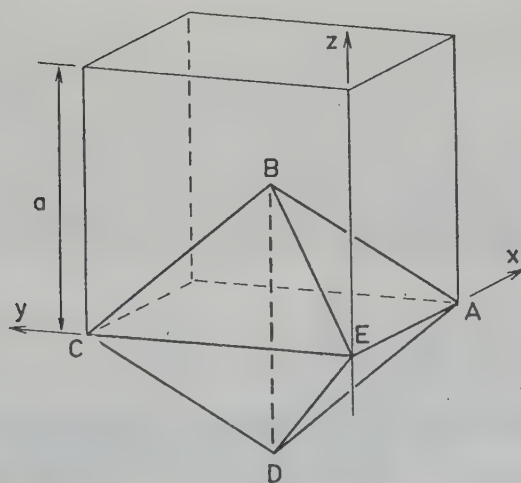


Figure n° 3 : Famille des vecteurs $\frac{a}{2} \langle 111 \rangle$.

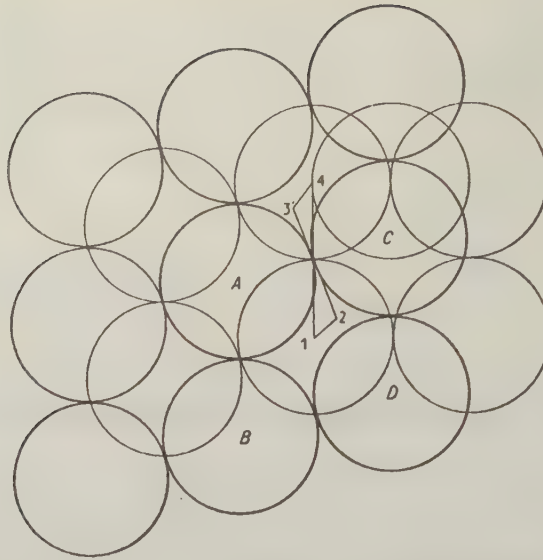


Figure n° 4 : Dissociation de COHEN-CRUSSARD

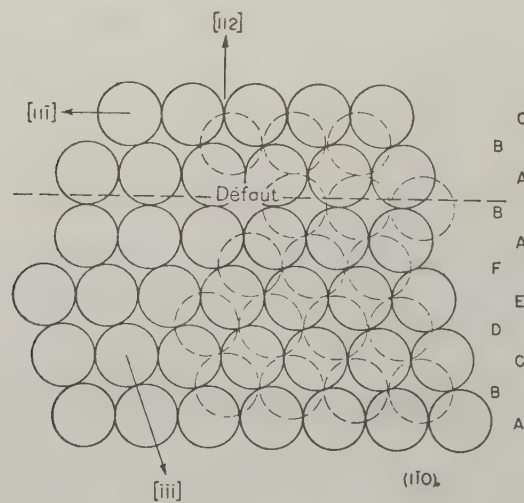


Figure n° 5 : Défaut d'empilement dans un plan $\{112\}$

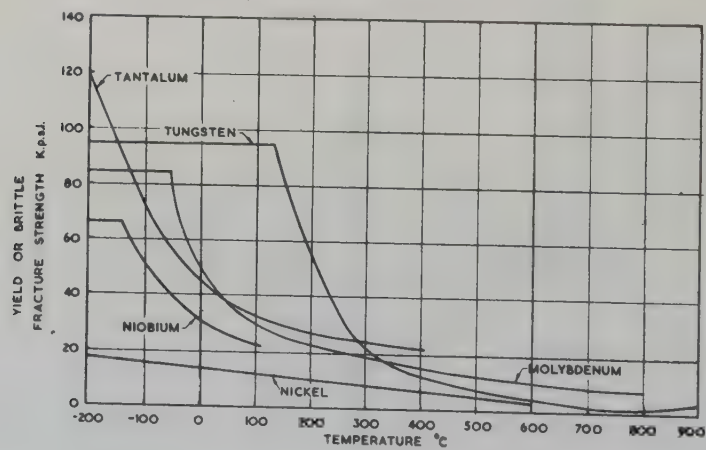


Figure n° 6 : Effet de la température sur la limite élastique des métaux cubiques centrés.

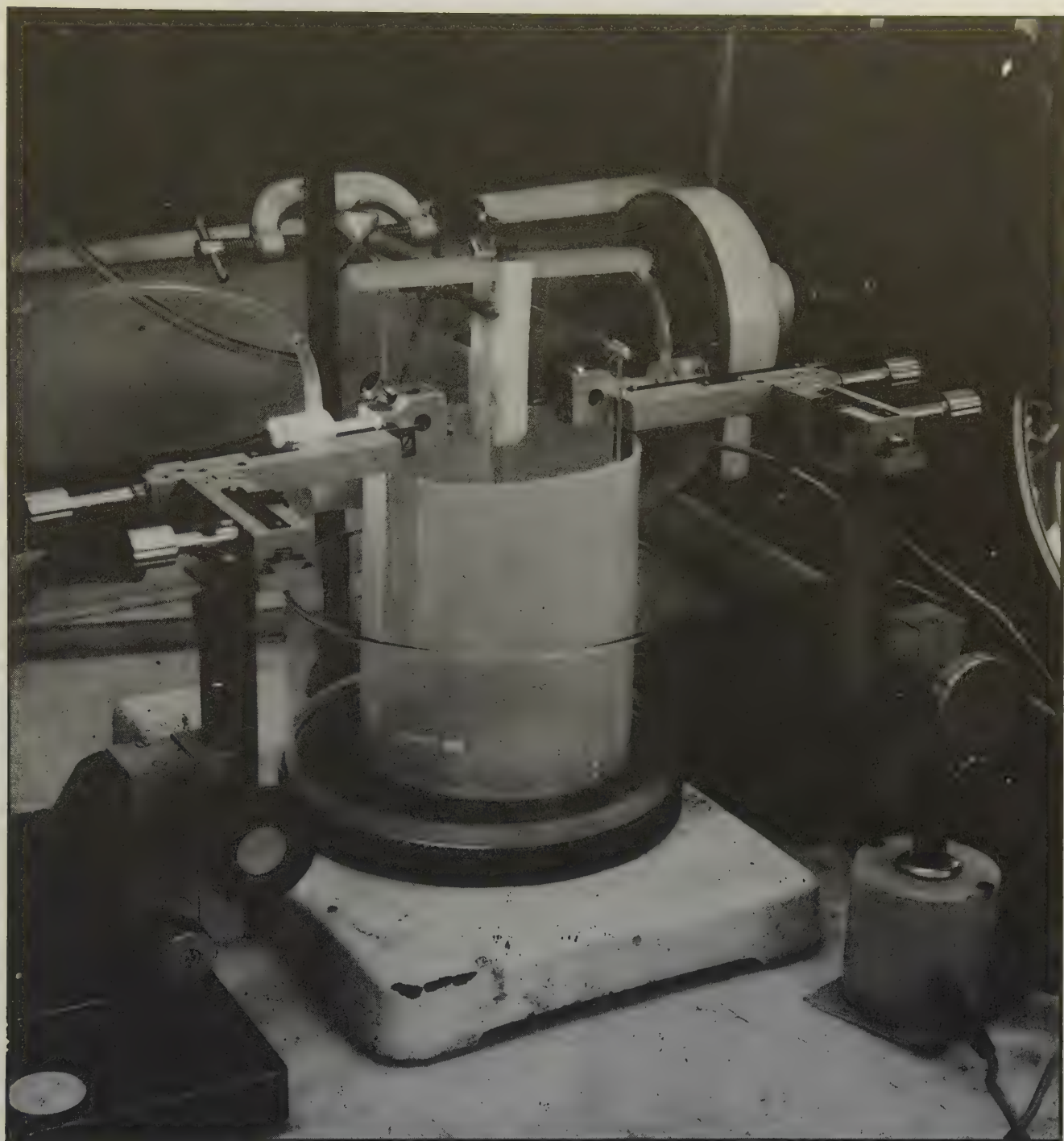


Figure n° 7 : Dispositif de polissage à double jet

L'échantillon se trouve au centre de la pièce en téflon
située au dessus du bac en polythène.

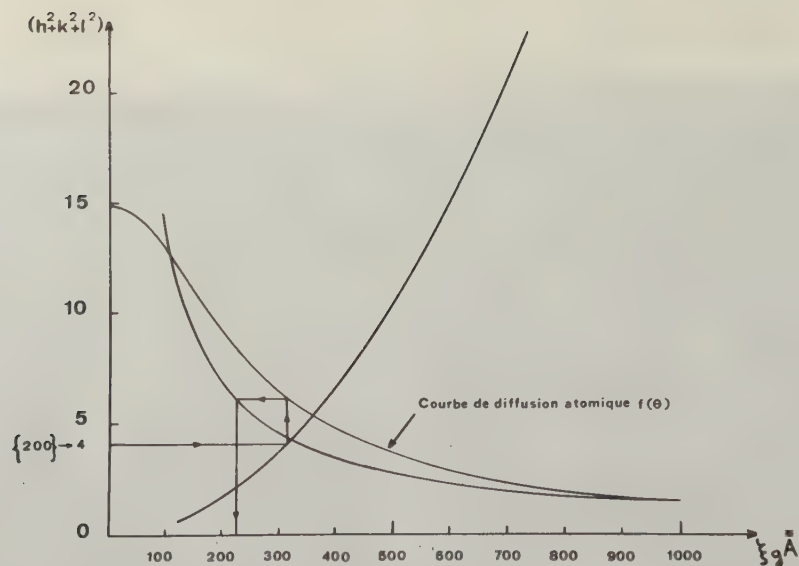
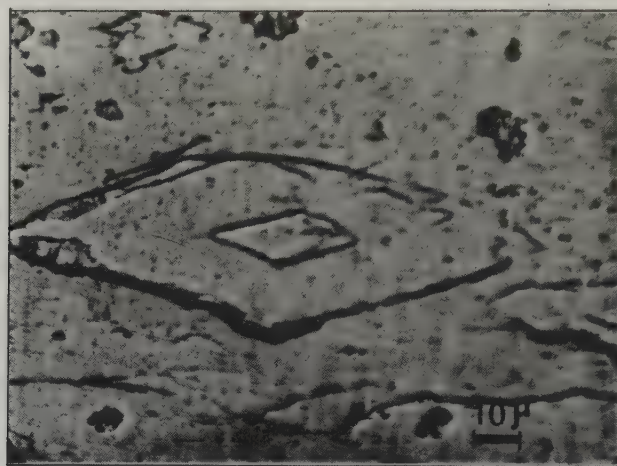
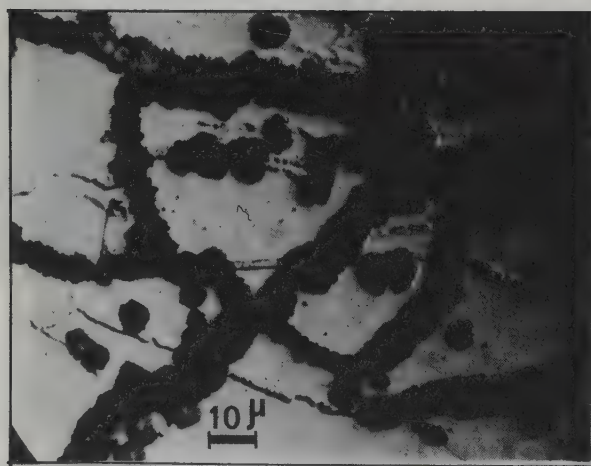


Figure n° 8 : Détermination graphique de la distance d'extinction dans le tungstène. $\vec{g} = [h,k,l]$



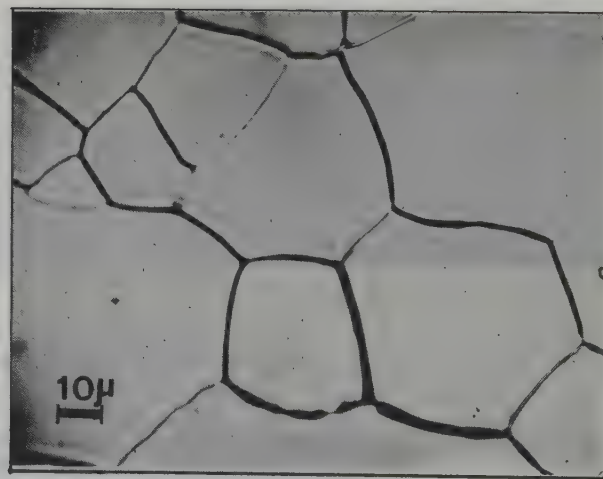
(a)

Tungstène C
brut de laminage



(b)

Figures d'attaque - (1200°C)



(c)

Tungstène recristallisé (1500 °C)

Figure n° 9 : Microscopie Optique



Figure n° 10 : Aspect micrographique du tungstène brut de laminage

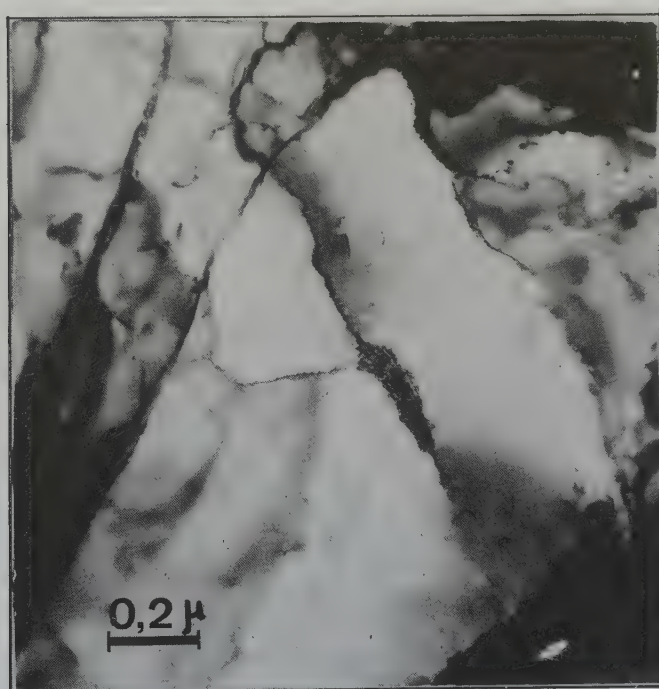


Figure n° 11 : Tungstène recuit à 900 °C

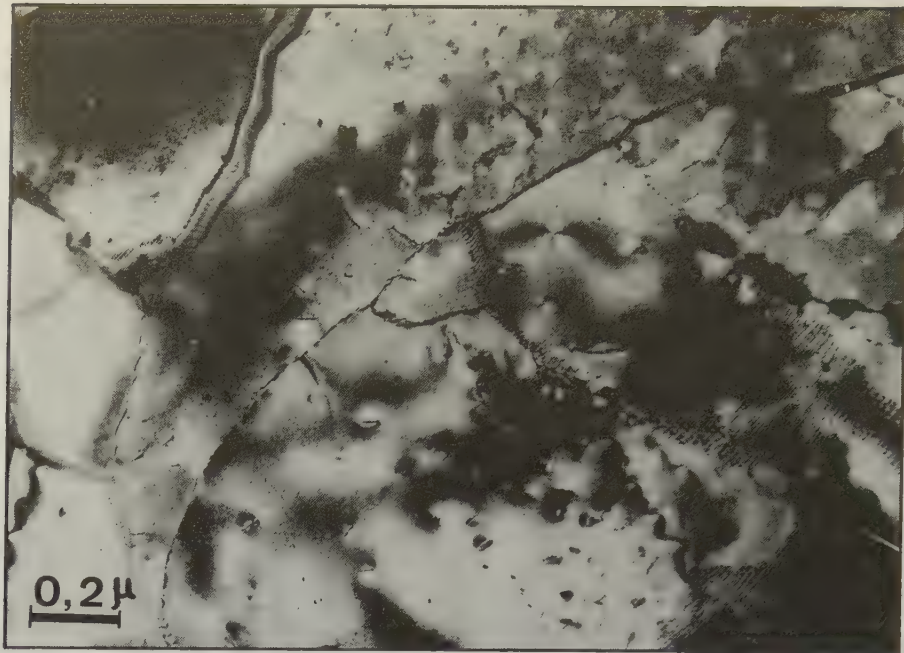


Figure n° 12 : Sous-joints dans du tungstène recuit à 1100 °C



Figure n° 13 : Tungstène bien recristallisé (recuit à plus de 2000 °C)

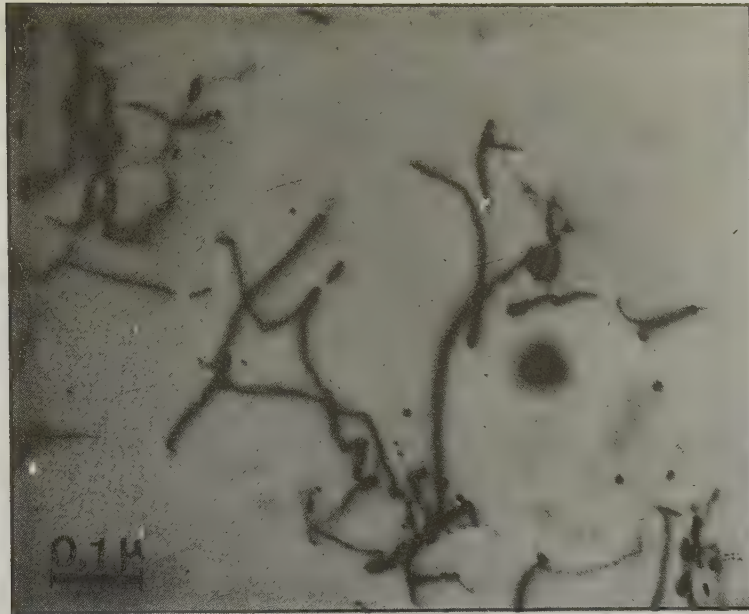


Figure n° 14 : Configuration des dislocations dans le tungstène écroui.

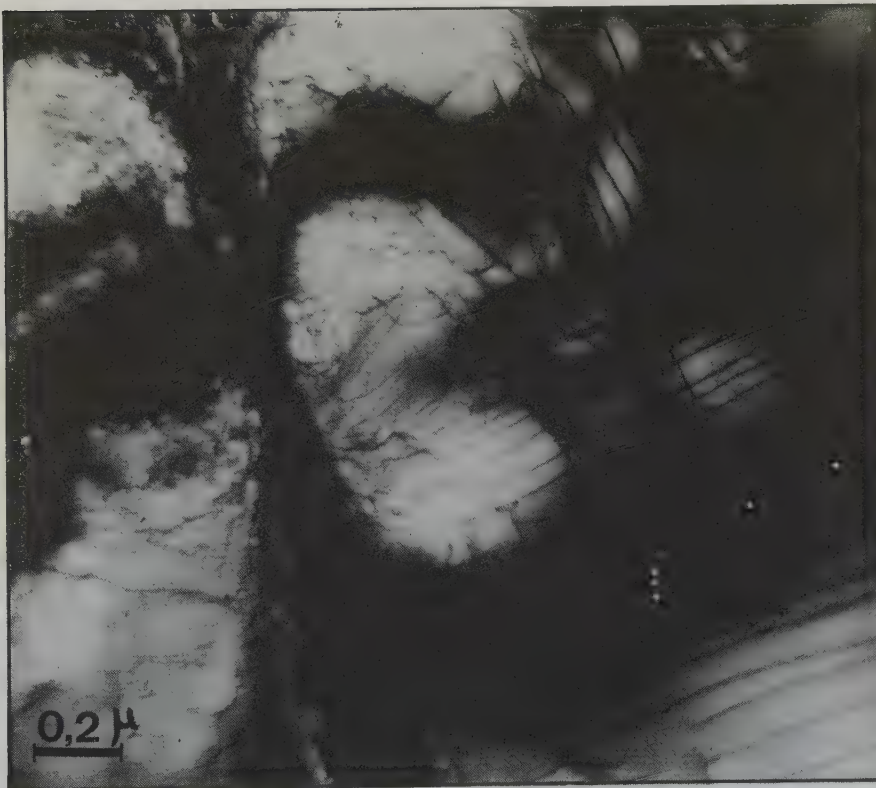


Figure n° 15 : Dislocations rectilignes engendrées par pliage.

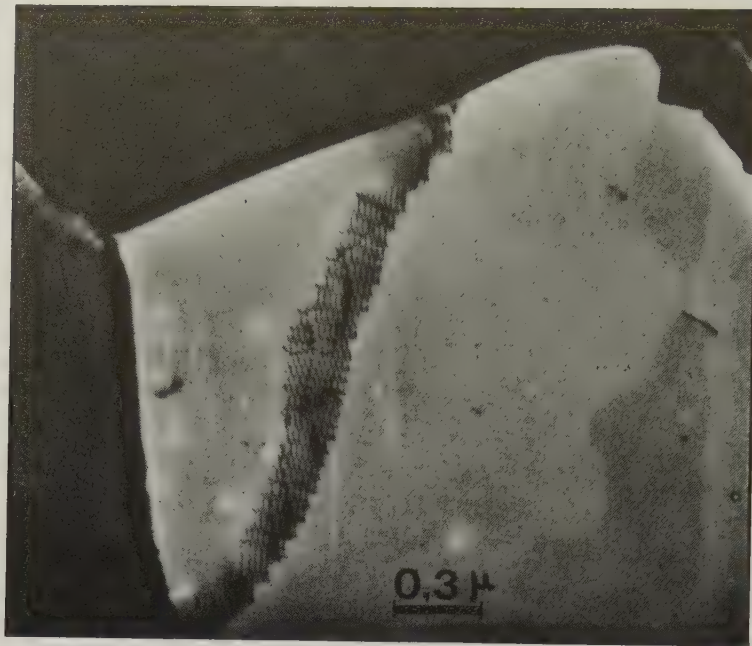


Figure n° 16 : Réseau de dislocations pseudo-hexagonales



Figure n° 17 : Observation de défauts plans dans du tungstène porté à haute température.

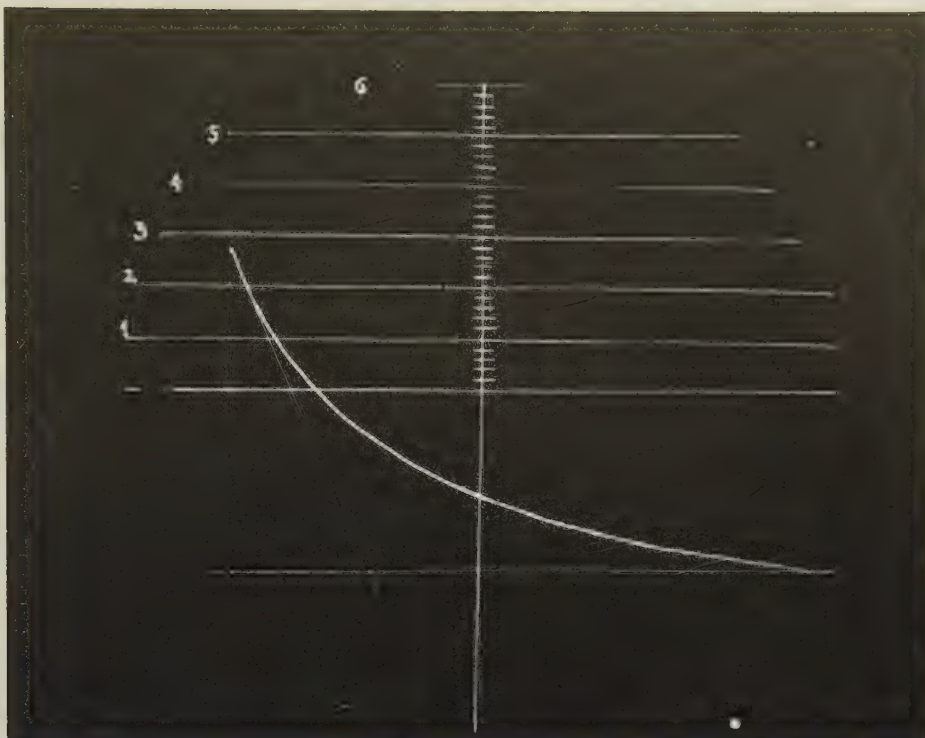


Figure n° 18 : Enregistrement de la vitesse de trempe dans l'argon liquide.
La pente à l'origine correspond à une vitesse initiale de $20.000^{\circ}/s$. environ

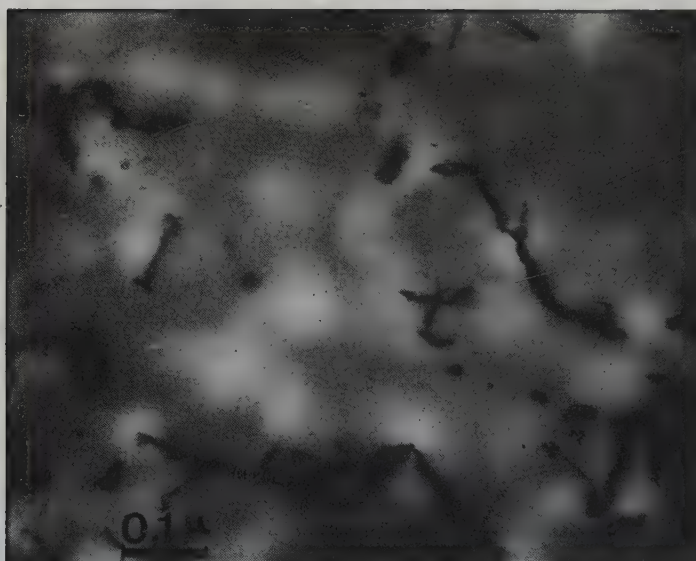


Figure n° 19 : Trempe de tungstène dans l'alliage de Wood suivi d'un recuit 2h à $700^{\circ}C$.
On note l'écrouissage important et l'absence de boucles.

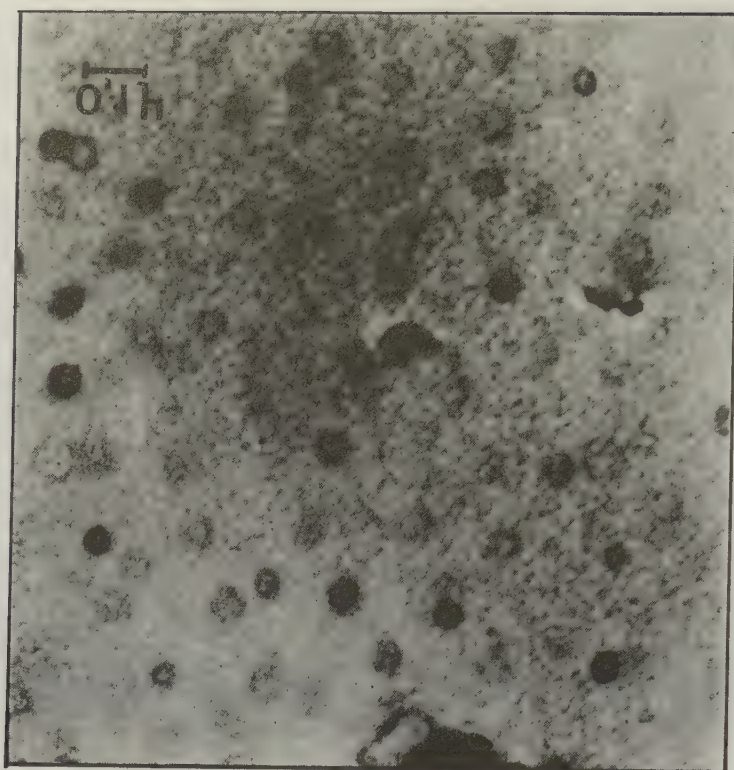


Figure n° 20 : Trempe au mercure : observation de précipités

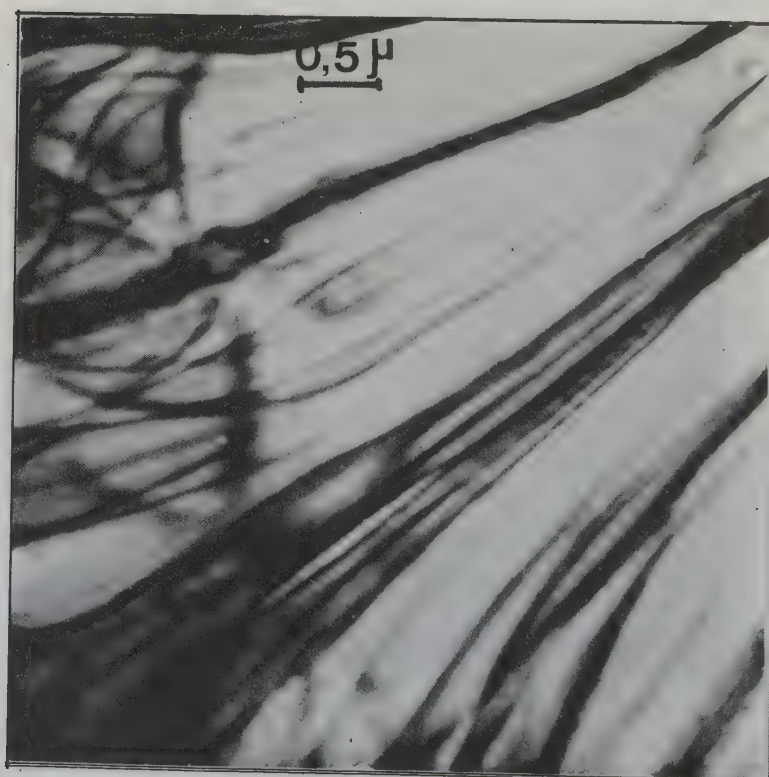


Figure n° 21 : Trempe au gallium : tungstène brut de trempe

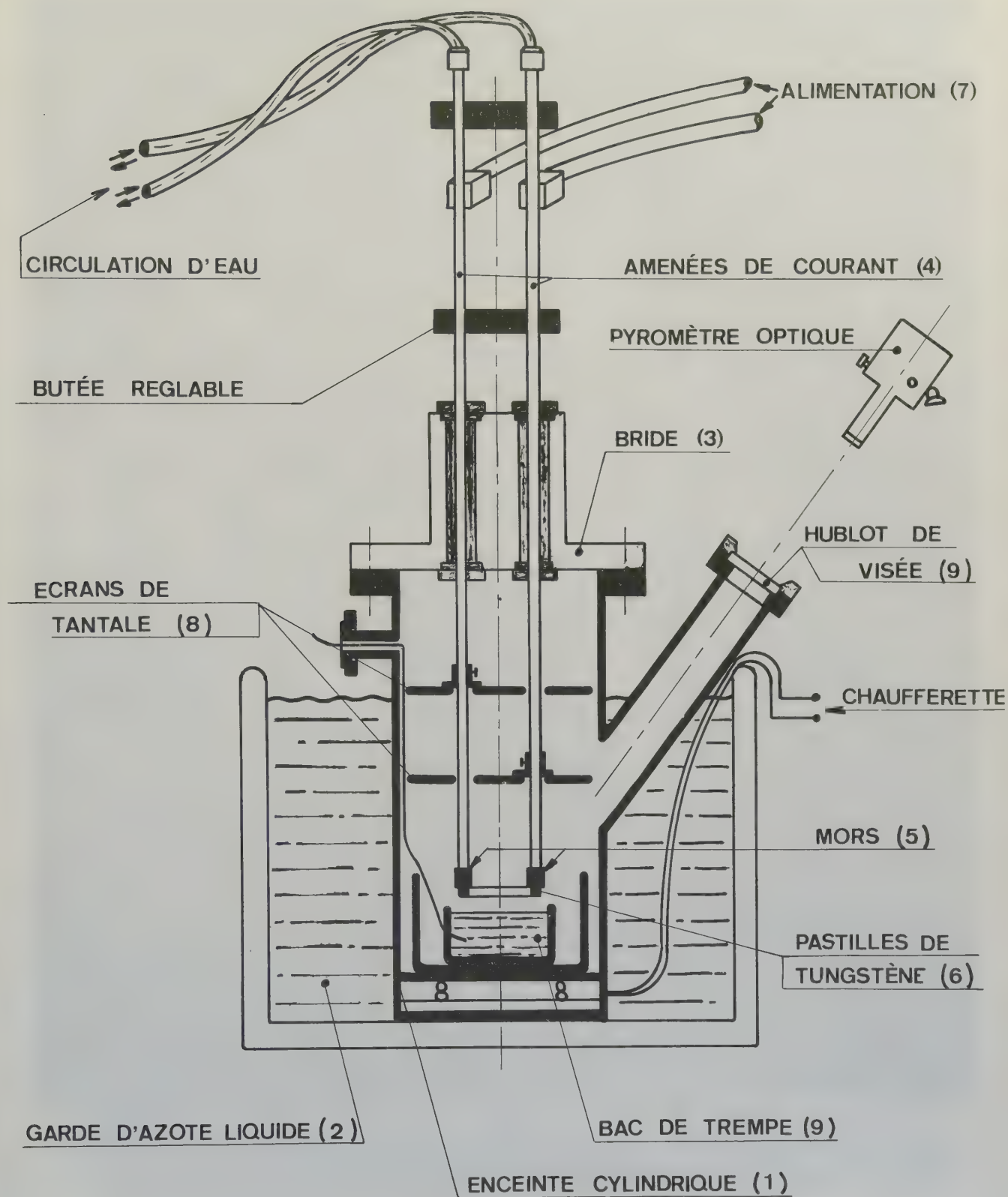


Fig.n°22: DISPOSITIF DE TREMPE DANS UN BAIN MÉTALLIQUE

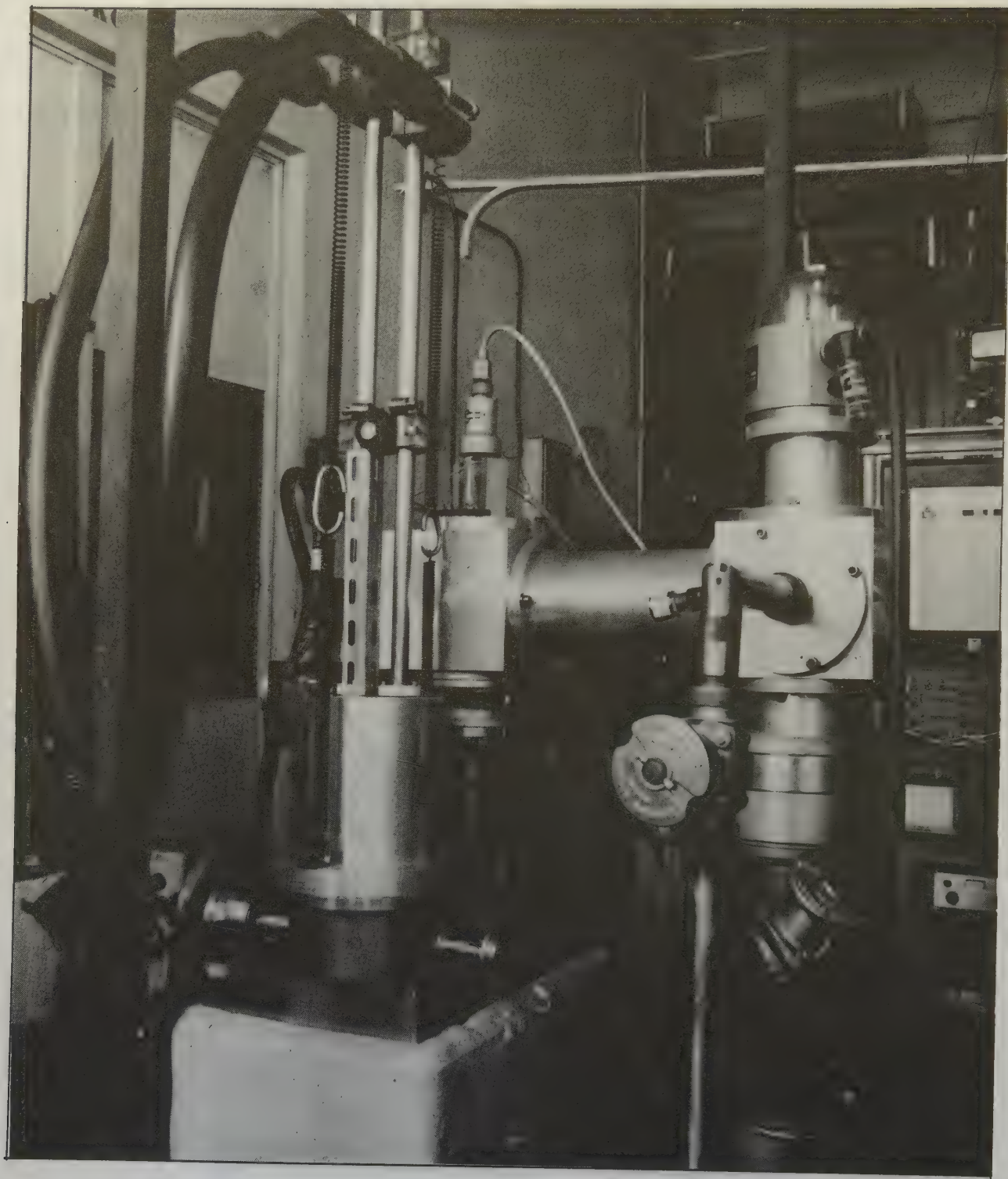


Figure n° 23 : Dispositif de trempe (vue d'ensemble)

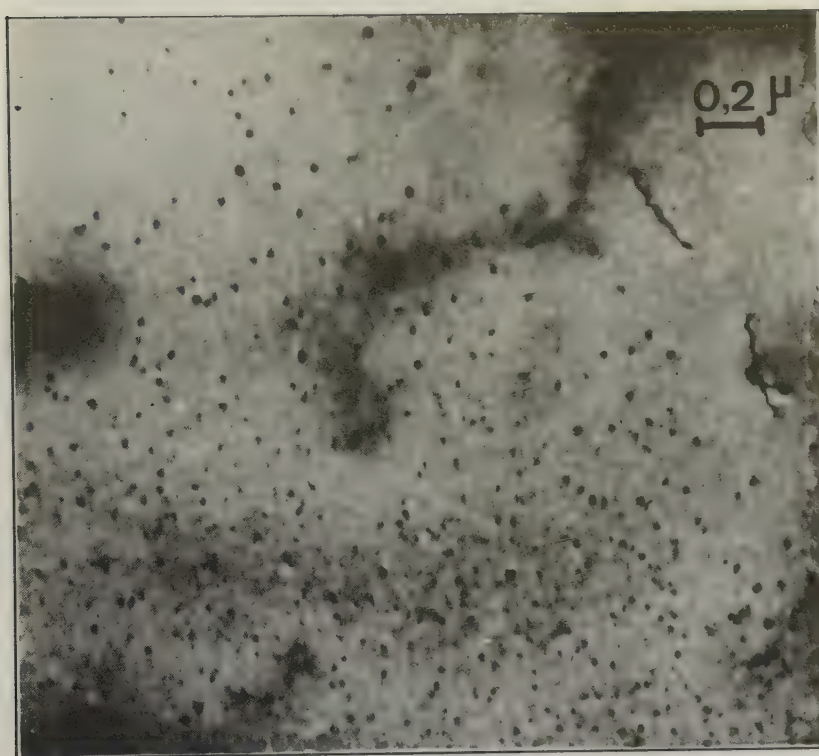


Figure n° 24 : Trempe au gallium : tungstène trempé, recuit 1 h à 600 °C

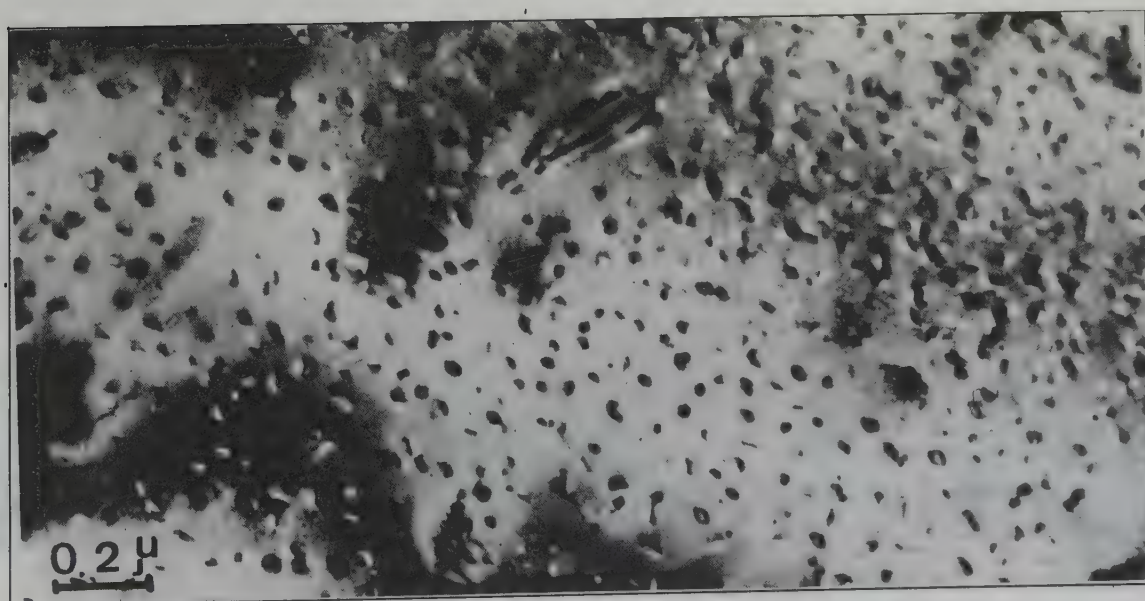


Figure n° 25 : Trempe au gallium : tungstène trempé, recuit 1 h à 800 °C



Figure n° 26 : Tungstène trempé au gallium, recuit à 800 °C
Zone dénudée au voisinage des joints de grain.

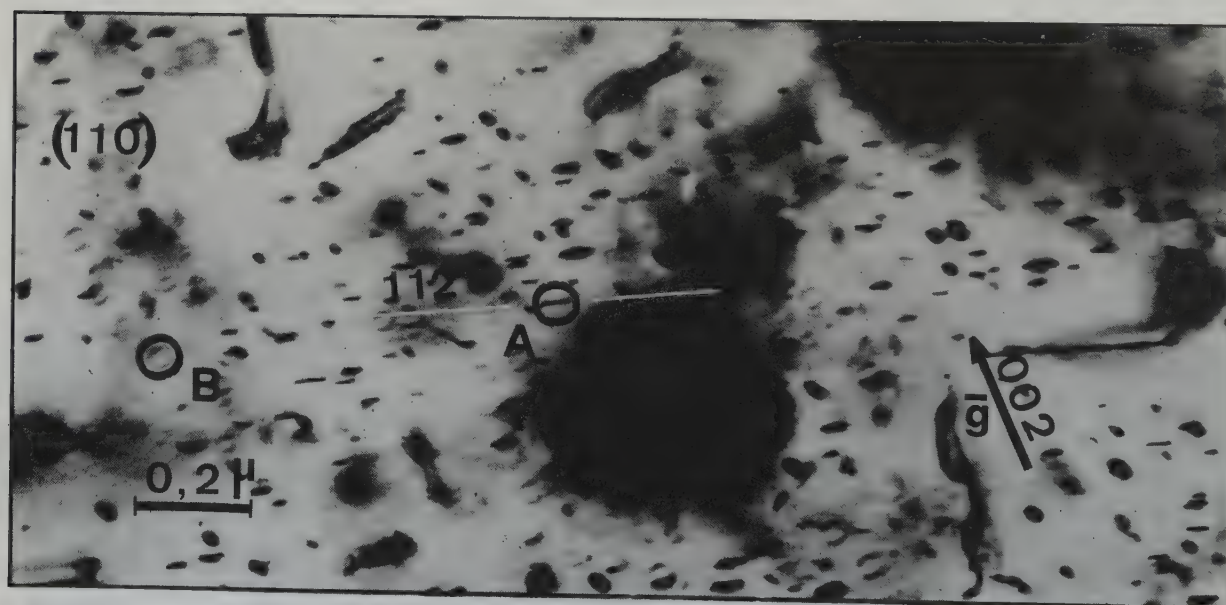


Figure n° 27 : Tungstène trempé, recuit à 800 °C.
Analyse des boucles de trempe.

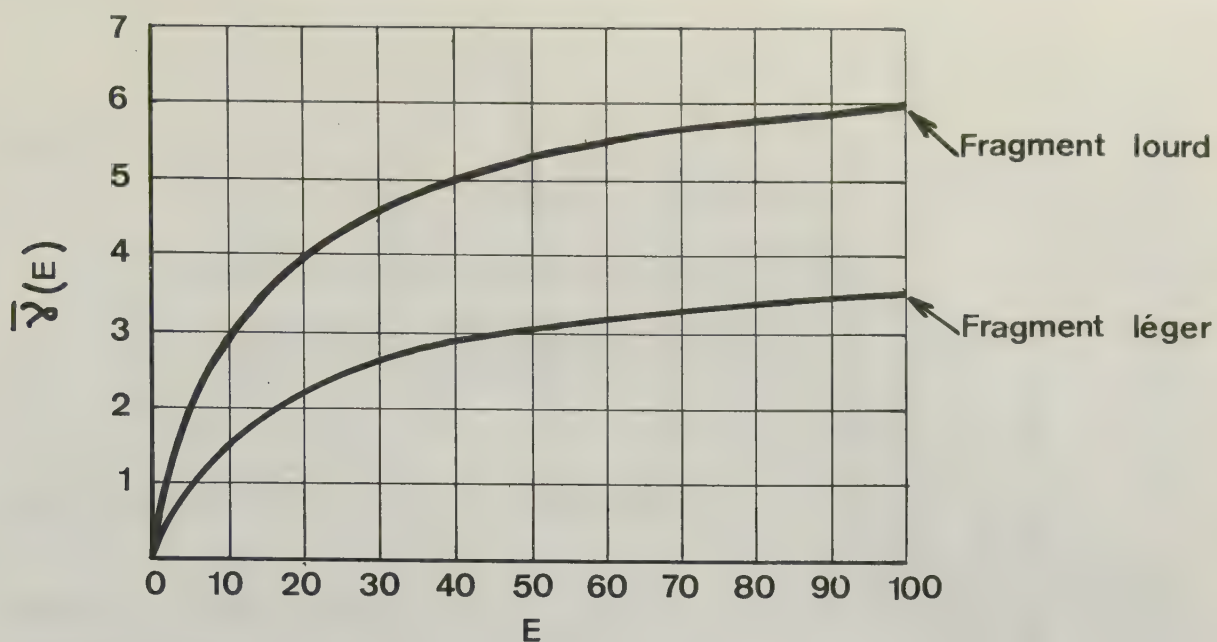


Fig.n° 28: DISSIPATION D'ÉNERGIE PAR COLLISIONS ATOMIQUES.

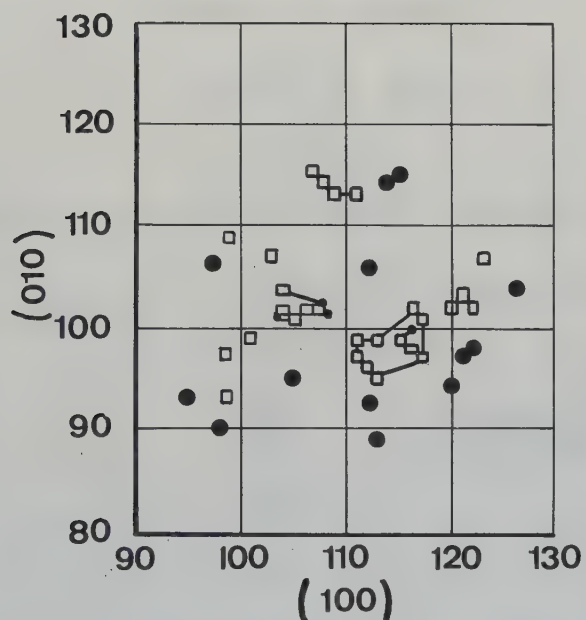


Fig.n° 29: SIMULATION D'UNE CASCADE DE DÉPLACEMENTS
À DEUX DIMENSIONS.

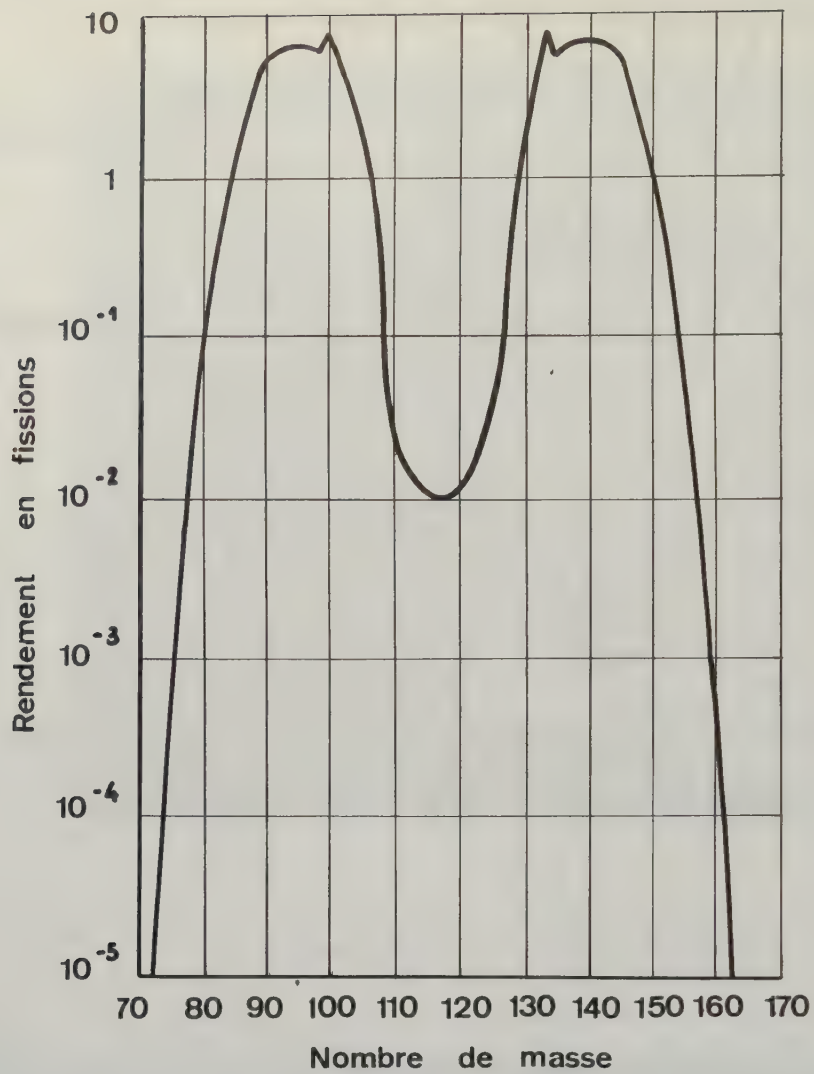


Fig.n°30: Rendement des produits de fission en fonction de la masse

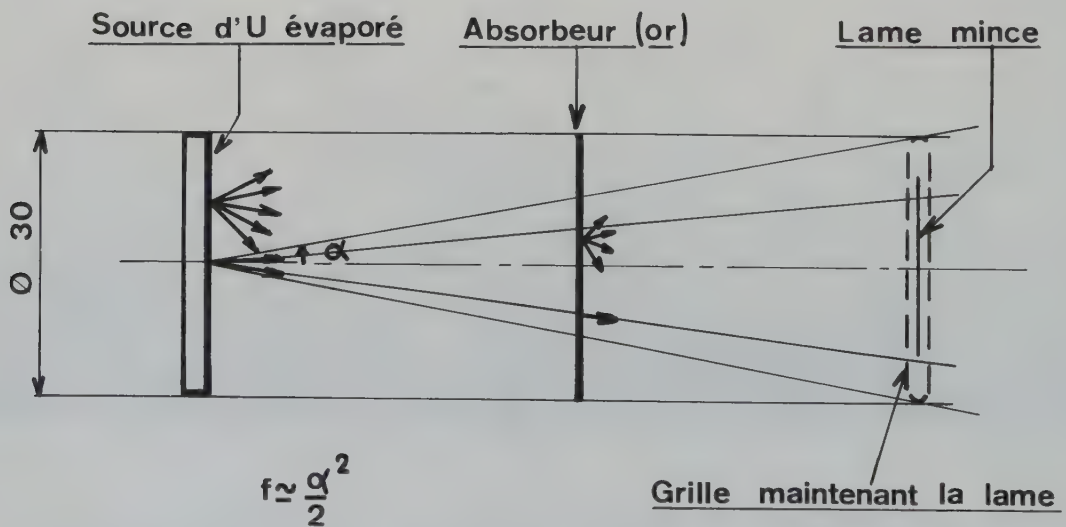
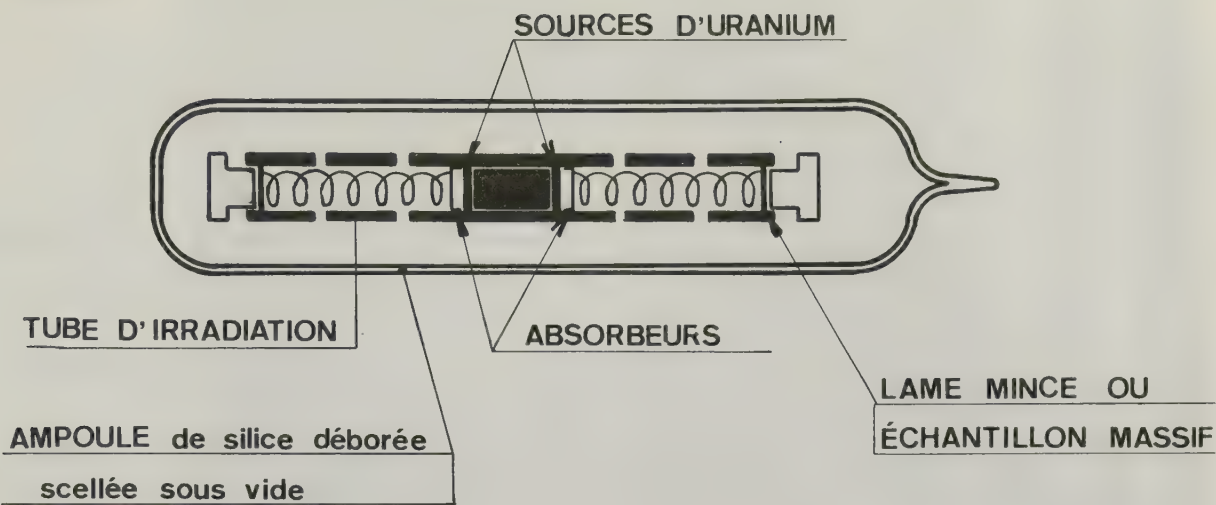


Fig.n° 31: Schéma de l'irradiation par les particules de fission

A- TUBES



B- BARILLETS

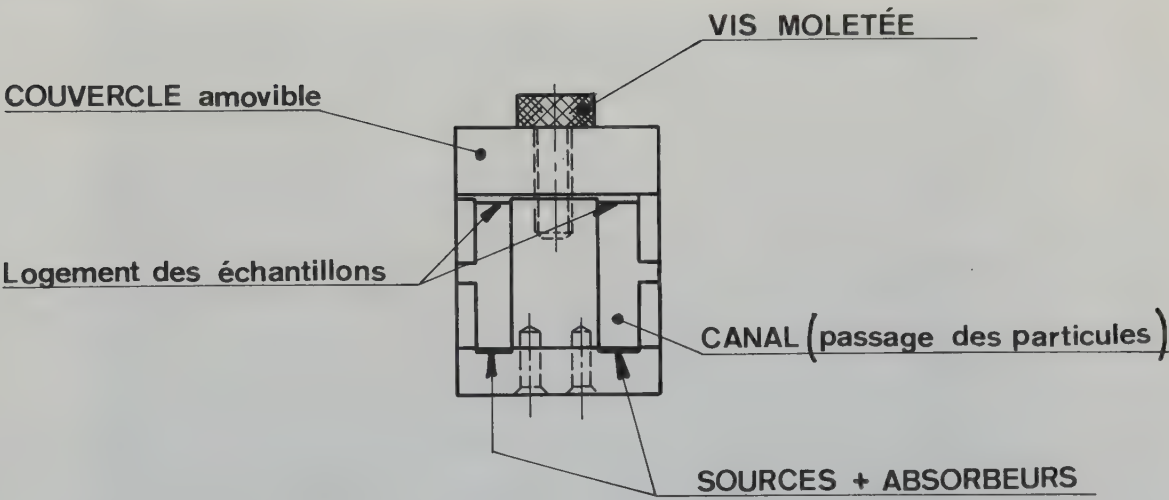
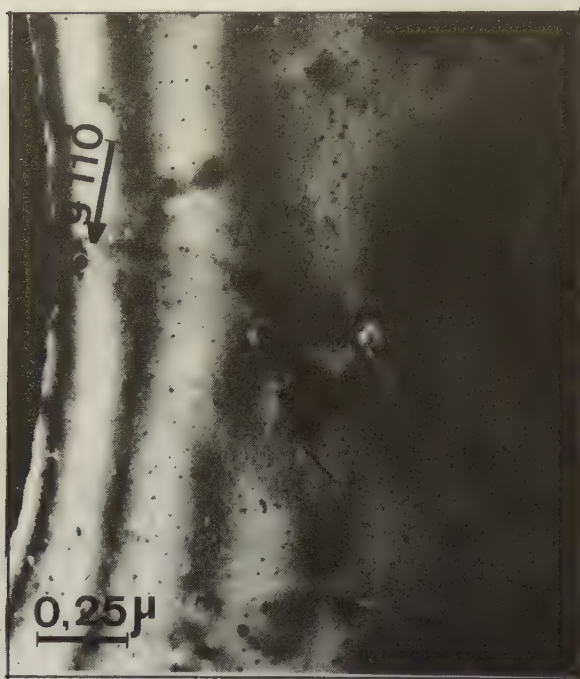


Fig. n° 32: DISPOSITIFS D'IRRADIATION



En position exacte de BRAGG ($s = 0$),
il est possible de compter jusqu'à
4 franges d'épaisseur.

Compte tenu du vecteur de diffraction g ,
on en déduit l'épaisseur moyenne
de la zone :

$$e = 4 \times 165 \simeq 700 \text{ angstroems}$$

Figure n° 33 : Mesure de l'épaisseur d'une zone observée.

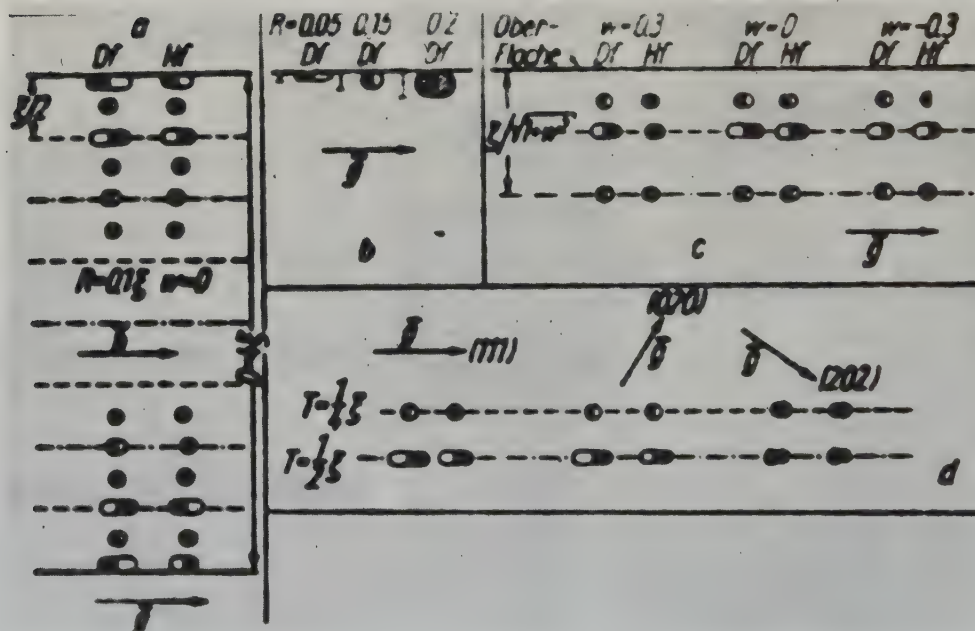


Figure n° 34 : Images calculees des contrastes noir-blanc (théorie de RUHLE)

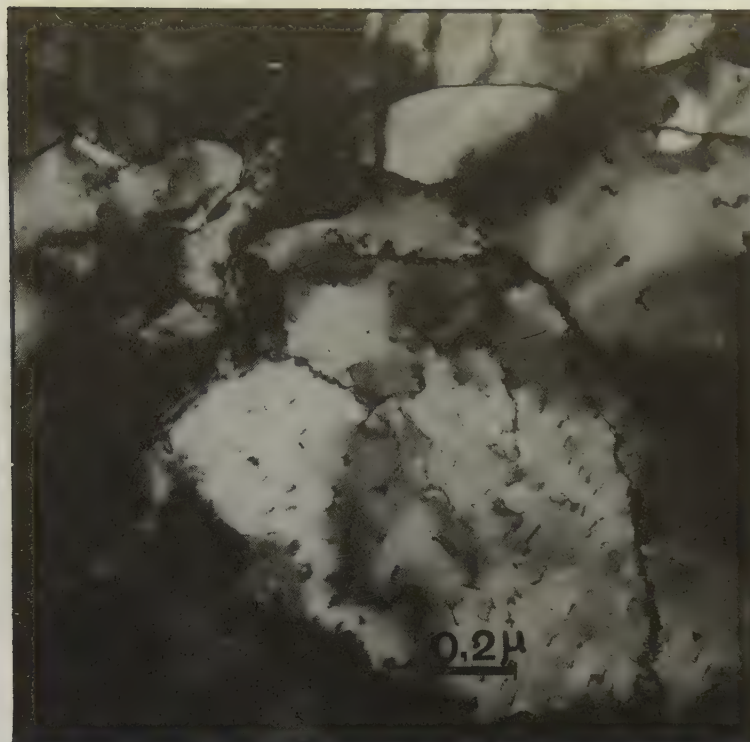


Figure n° 35 : Echantillon (BL) irradié aux neutrons rapides.

Fluence : 10^{20} neutrons/cm²

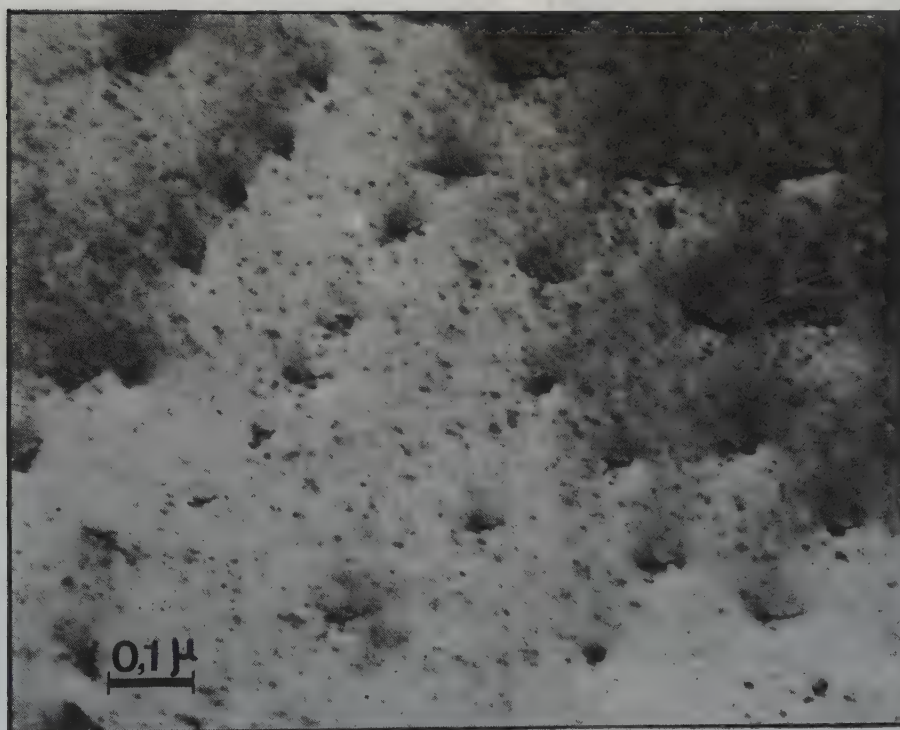


Figure n° 36 : Echantillon (R12) irradié aux neutrons rapides.

Fluence : 10^{20} neutrons/cm²



Figure n° 37 : Aspect de (BL) après un recuit à 1200 °C.

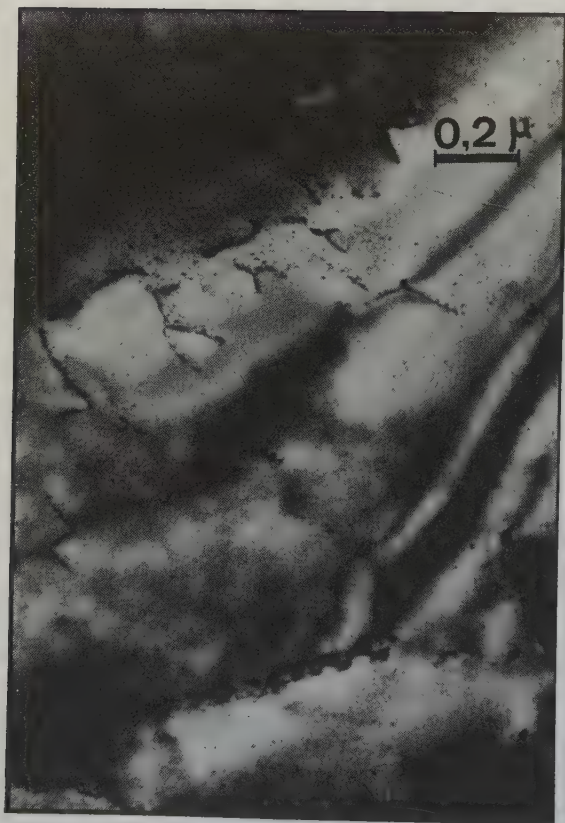


Figure n° 38

Inhomogénéité des dégâts d'irradiation



Figure n° 39

Dislocation ancrée par
les amas d'irradiation

IRRADIATION PAR LES PARTICULES DE FISSION



Figure n° 40

$$\Phi = 1,5.10^{10} \text{ f.f./cm}^2$$

"Dots" très fins



Figure n° 41

$$\Phi = 4,10^{11} \text{ f.f./cm}^2$$

Certains amas sont plus gros
que sur la figure n° 40

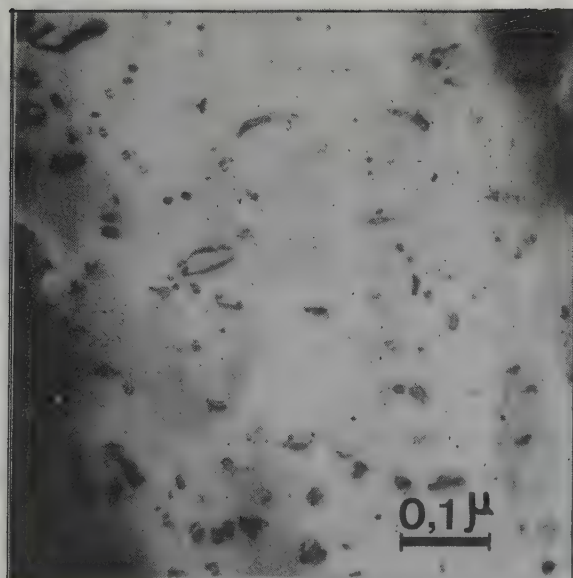


Figure n° 42

$$\Phi = 3.10^{13} \text{ f.f./cm}^2$$

On note des boucles résolues
de grande taille

COURBES $N(\Phi)$ (Irradiations aux P.F.)

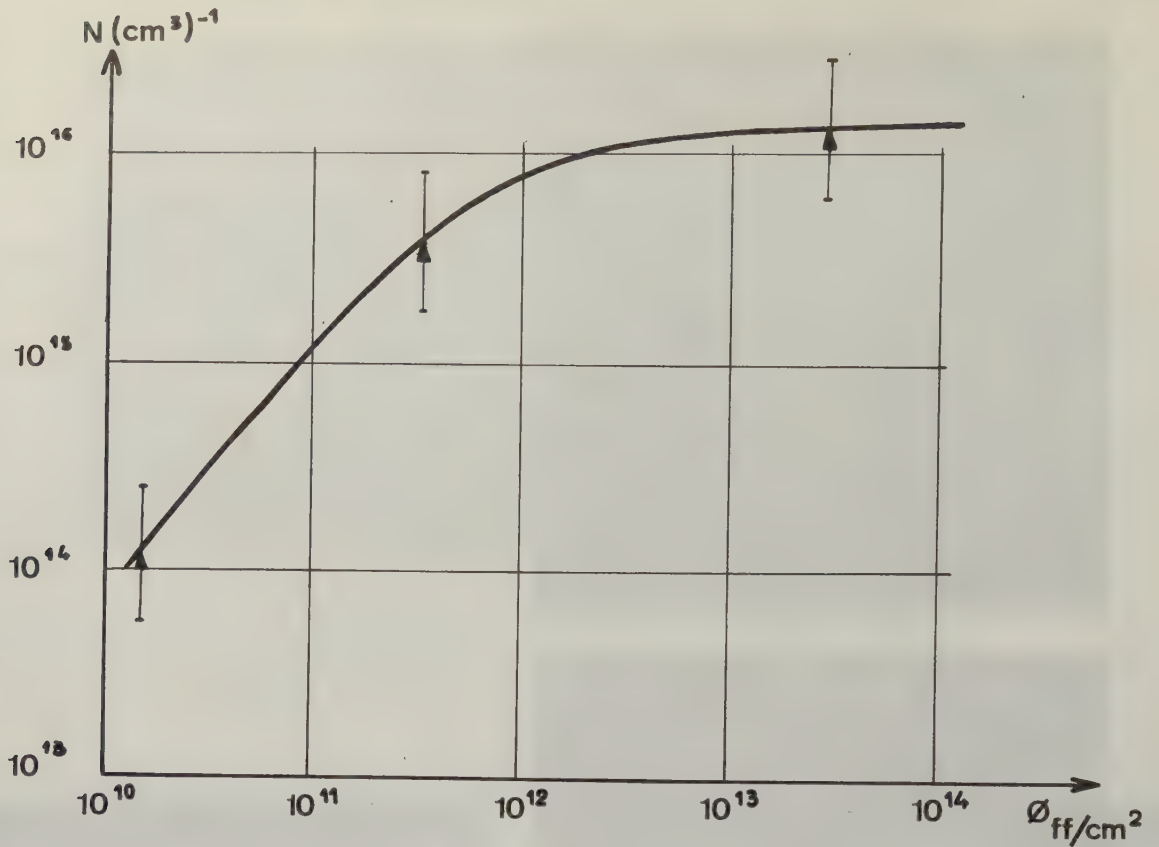


Fig. n° 43: ECHANTILLON MASSIF

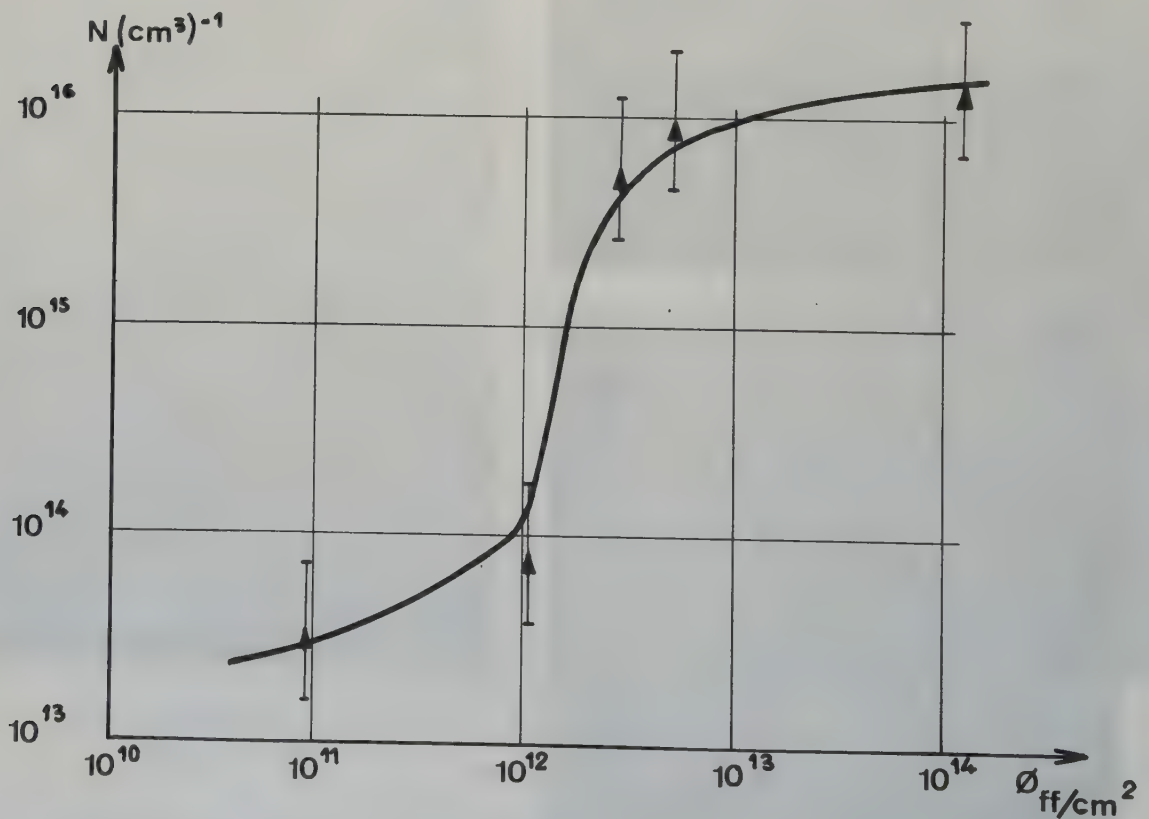


Fig. n° 43 bis: LAME MINCE

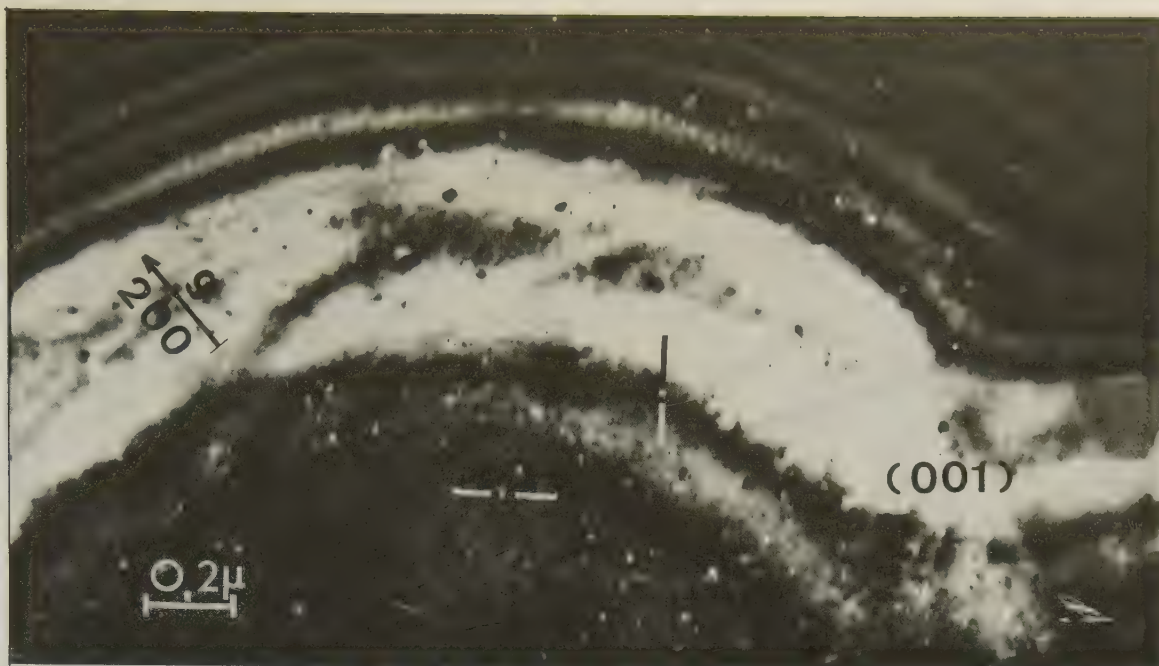
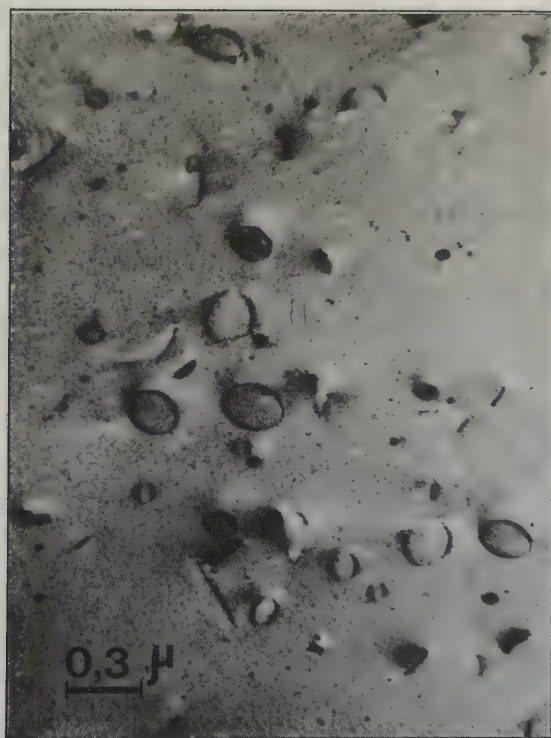
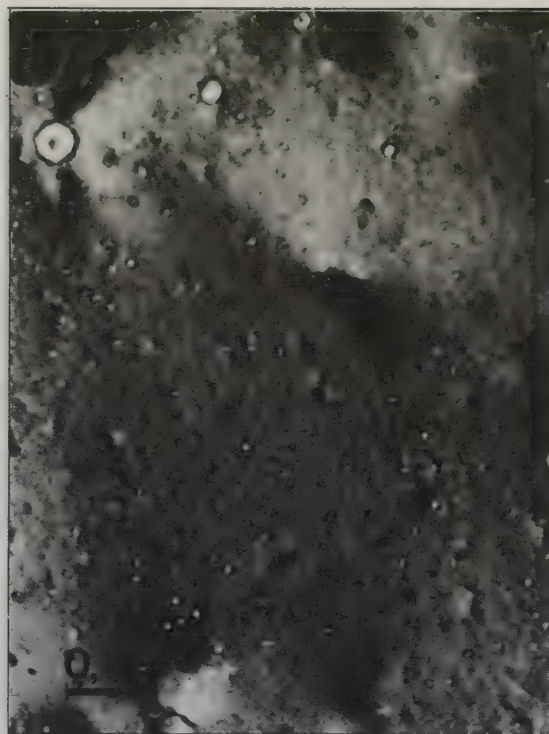


Figure n° 44 : Analyse des contrastes noir-blanc sur du tungstène
irradié aux particules de fission ($\Phi = 6.10^{12}$ f.f./cm²)



(a)

Grosses boucles



(b)

Cavités

Figure n° 44 bis : Irradiation de tungstène à haute température (900 °C)
par les neutrons rapides. Flux instantané : 2.10^{14} neutrons/cm²/s.
Fluence : 4.10^{20} neutrons/cm².

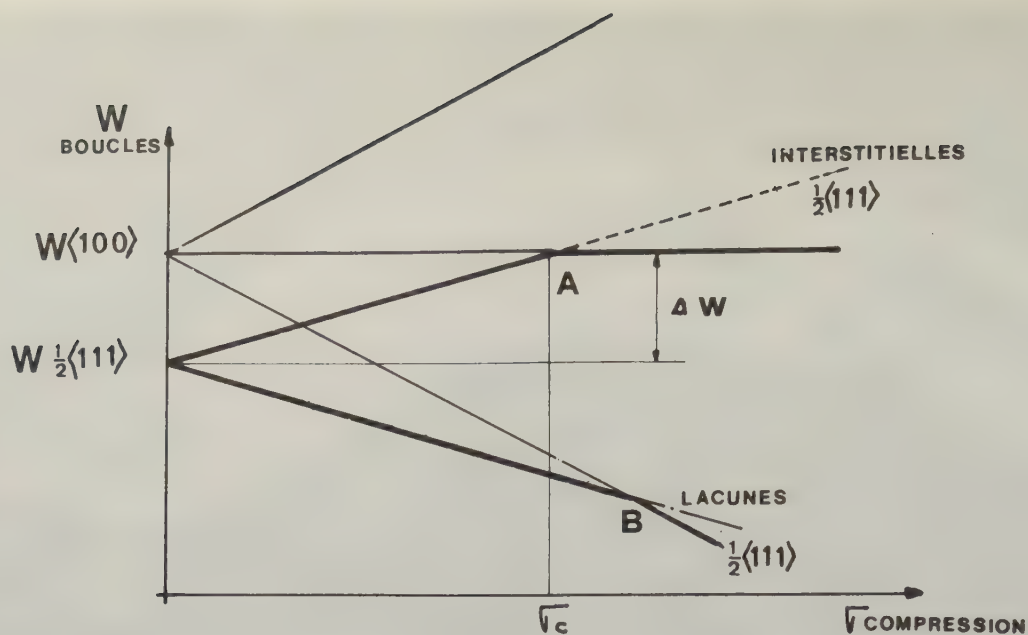


Figure n° 45 : Energie de différents types de boucles de dislocation dans un métal cubique centré en fonction d'une contrainte appliquée le long de [001].

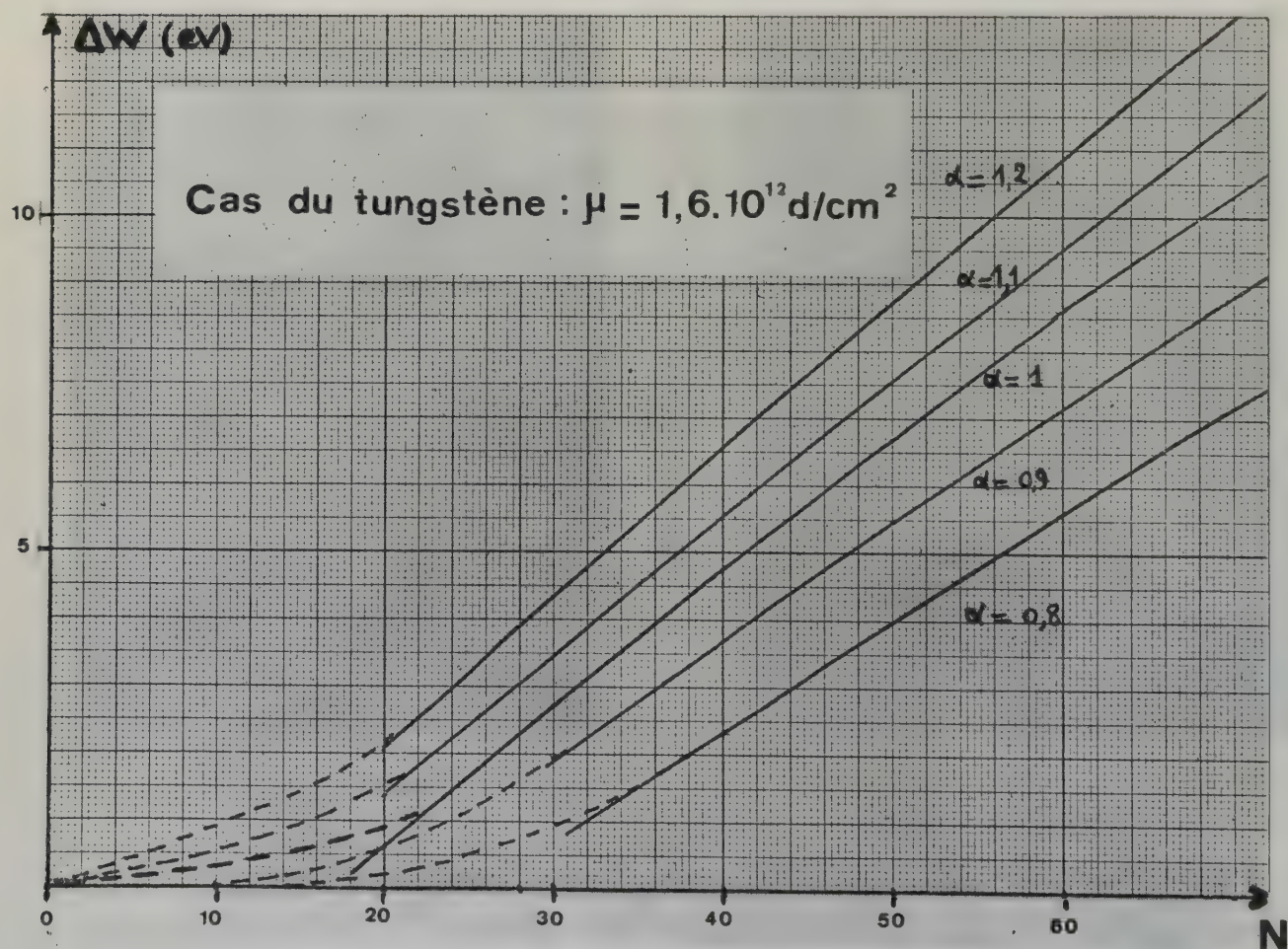


Figure n° 46 : Variation de ΔW ; en fonction de N

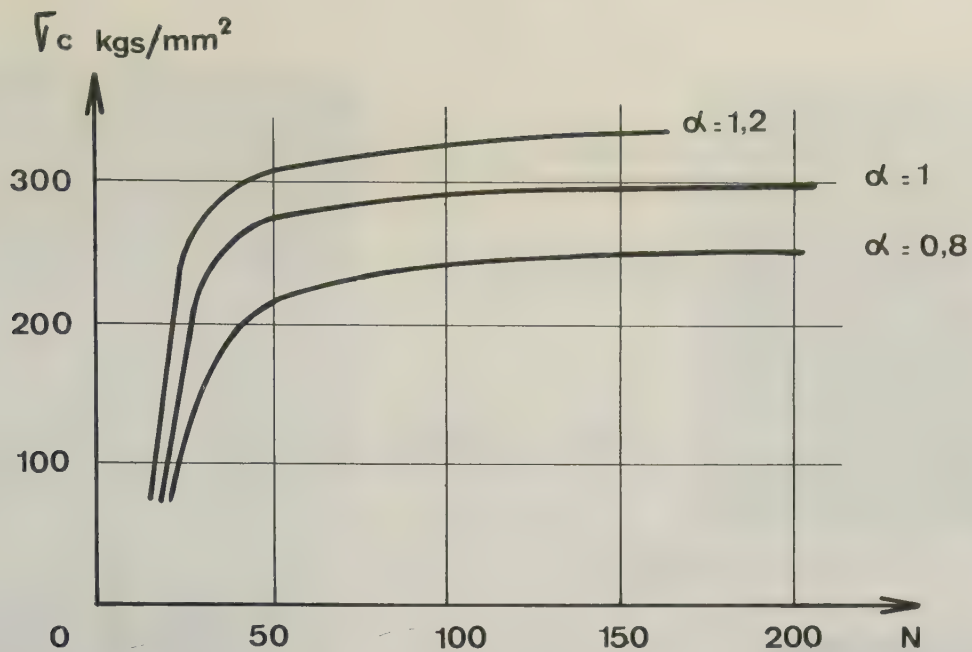


Fig. n° 47: Variation de la contrainte critique (voir figure 2) en fonction du nombre N de défauts ponctuels contenus dans une boucle - Métal: tungstène.

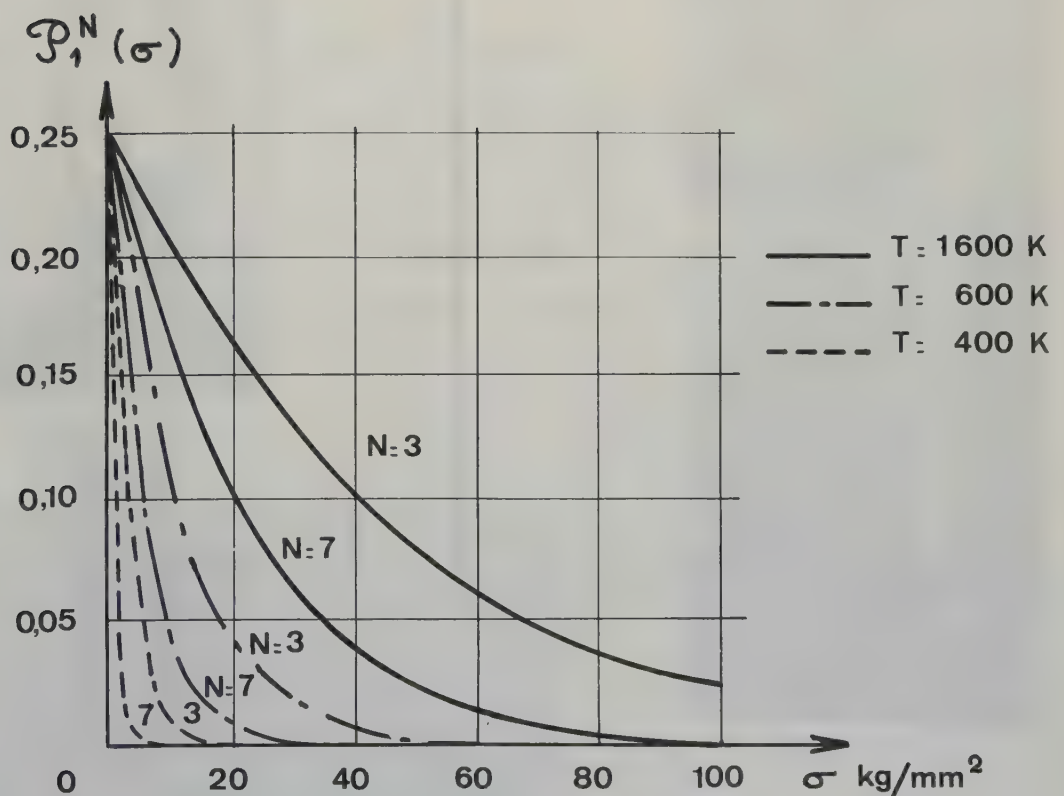


Fig. n° 48: Probabilités de germination calculées $\vec{\sigma} // [111]$

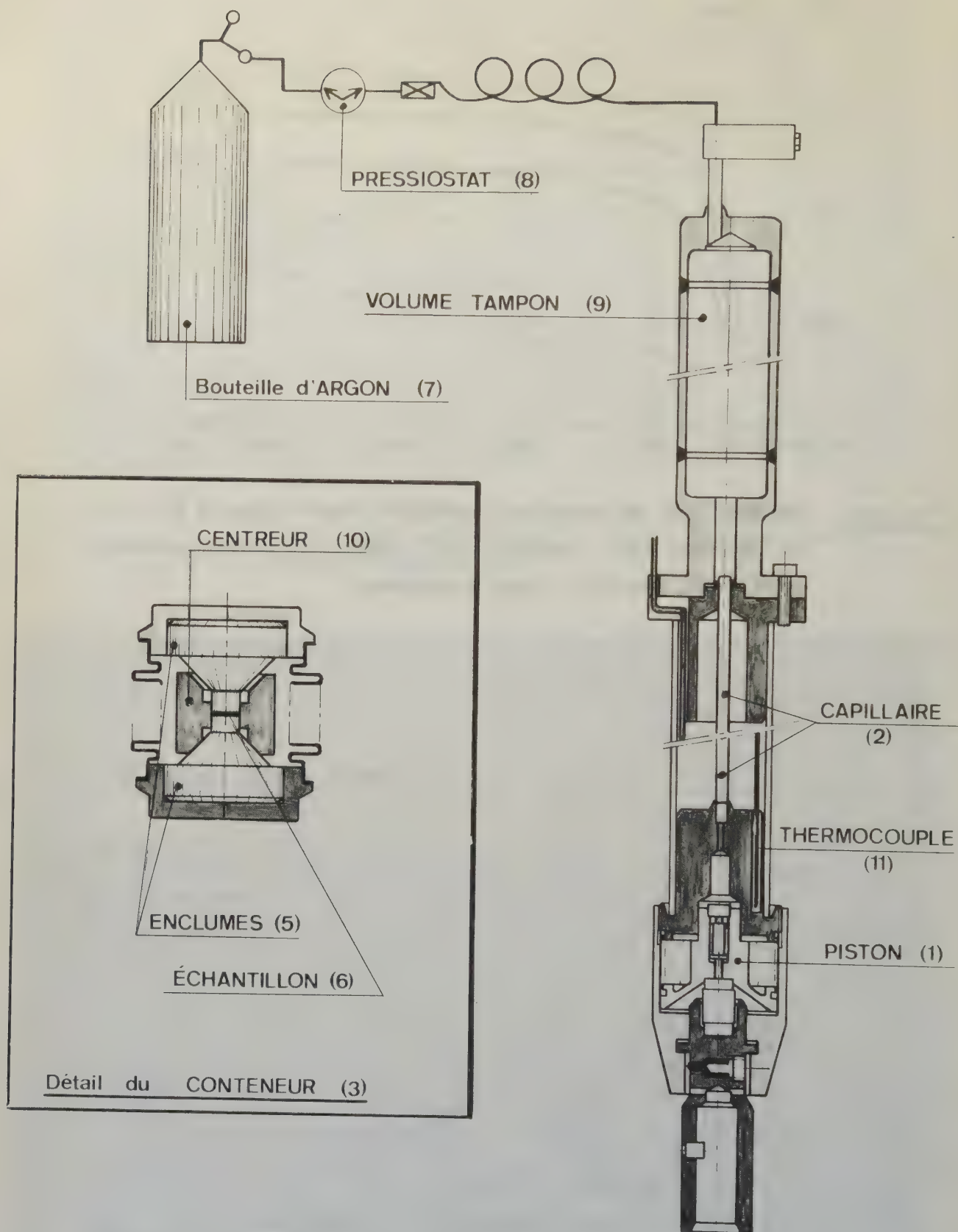
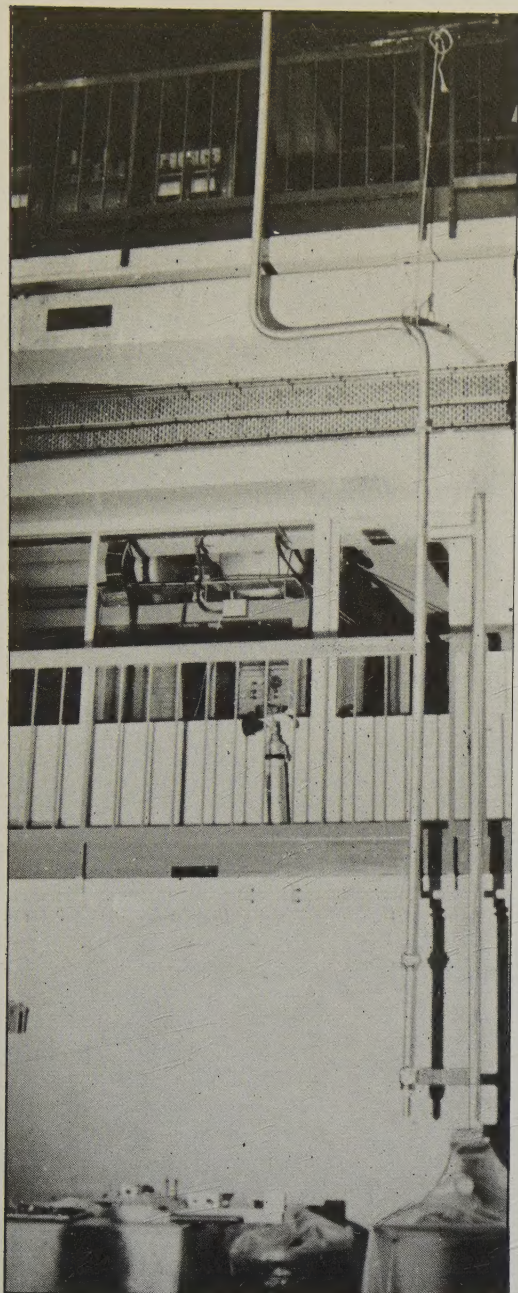


Fig. n° 49: SCHÉMA DU DISPOSITIF D'IRRADIATION
SOUS CONTRAINTE.



(a)

Vue d'ensemble (a)

Détail : (b)

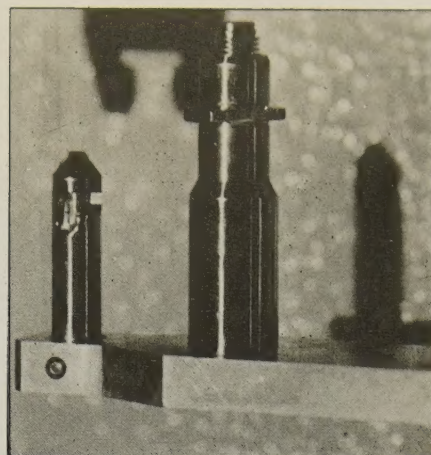
le conteneur repose
sur sa butée

Bas de la perche : (c)

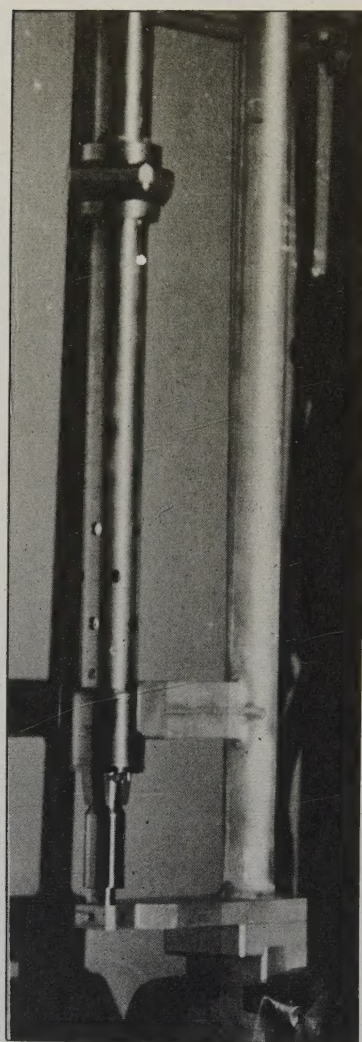
Verrouillage de la
butée sur son support

Détail : (d)

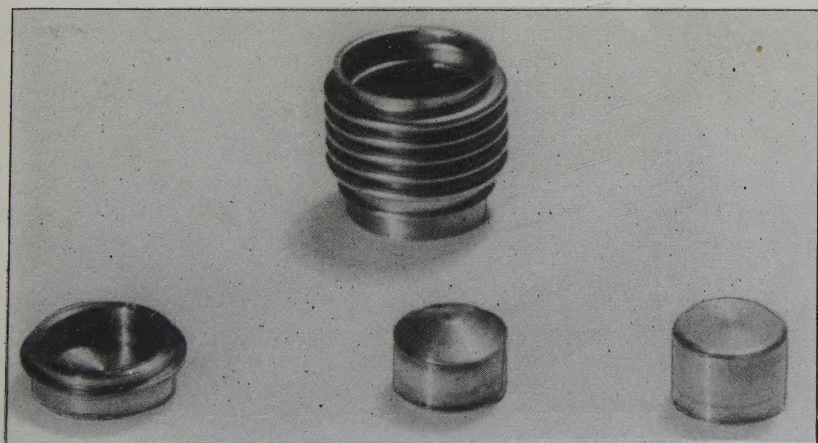
Conteneur et enclumes



(b)



(c)



(d)

Figure n° 50

Dispositif d'irradiation
sous contrainte

Vu et approuvé
Orsay, le 22 Avril 1971
Le Vice-Président du Centre d'Orsay

estembers

